

**IX. SZIMPÓZIUM A HAZAI
KVANTUMELEKTRONIKAI KUTATÁSOK
EREDMÉNYEIRŐL**

**KVANTUMELEKTRONIKA
2021**

SZEGED

Jelen kutatási eredmények megjelenését az „Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben” című, EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosítószámú projekt támogatja. A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.



KVANTUMELEKTRONIKA 2021

IX. SZIMPÓZIUM A HAZAI KVANTUMELEKTRONIKAI KUTATÁSOK EREDMÉNYEIRŐL

RENDEZTE:

ELFT Atom-, Molekulafizikai és Kvantumelektronikai

Szakcsoport

MTA Lézerfizikai Tudományos Bizottság

SZTE TTIK Fizikai Intézet

'''

A kiadvány megjelent: 2020. december 16.

Szerkesztő:

Földi Péter, Magashegyi István

ISBN 978-963-306-775-8

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9>

Kiadó: Szegedi Tudományegyetem
Természettudományi és Informatikai Kar
Fizikai Intézet

ELŐSZÓ

A jelen kötetben a **KVANTUMELEKTRONIKA 2021: IX. Szimpózium a hazai kvantum-elektronikai kutatások eredményeiről** című rendezvényen szereplő meghívott előadások és poszterek anyagainak $\frac{1}{4}$ részét tesszük közzé. A szimpózium a hagyományokat követve az optika, az atom- és molekulafizika és a plazmafizika területén folyó hazai kutatásokról és azok eredményeiről nyújt áttekintést. A kötetben mind angol, mind magyar nyelvű közlemények szerepelnek, hogy az ország számos intézetében dolgozó nem magyar anyanyelvű kutatók számára is lehetőséget biztosítsunk eredményeik publikálására.

A kötet online megjelenési formája miatt a szerkesztési módszer egyszerűsödött a korábbi évekhez képest. Most az első szerzők névsora szerint követik egymást a publikációk a kötetben. Az, hogy az adott munka meghívott előadásként, vagy poszter prezentációként szerepel a szimpóziumon, a fejlécben olvasható. Mind a tartalomjegyzék, mind pedig a névjegyzék linkként is működik, így egyetlen kattintással megtalálható a keresett munka. A $\frac{1}{4}$ rész gmszámos témakörhöz tartoznak, a teljesség igénye nélkül: lineáris és nemlineáris optika, lézerfizika, kvantumoptika és kvantuminformatika, lézerek orvosi és biológiai alkalmazásai, lézeres anyagmegmunkálás, lézerspektroszkópia, ellipszometria, plazmonika és THz impulzusok generálása. A $\frac{1}{4}$ rész gm első szerzői a következő intézményekből kerültek ki:

- Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem,
- Debreceni Egyetem,
- ELI-HU Nonprofit Kft.,
- Eötvös Loránd Tudományegyetem,
- Pécsi Tudományegyetem,
- Semmelweis Egyetem,
- MTA Szegedi Biológiai Kutatóközpont,
- Szegedi Tudományegyetem,
- MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont.

A rendezők nevében szeretnénk megköszönni a szerzők lelkiismeretes munkáját, bízunk benne, hogy a kötet hasznos olvasmány lehet a tudományterületet művelők számára.

A szerkesztők

Szeged, 2020. december 10.

Tartalomjegyzék

Andrásik Attila, Flender Roland, Budai Judit, Szörényi Tamás, Hopp Béla

Characterization of plasma reflectivity response of optical glasses processed by 34 fs pulses:
analysis in the context of ablation parameters 1

Andrásik Attila, Flender Roland, Budai Judit, Szörényi Tamás, Hopp Béla

Surface processing of optical glasses with 34 fs pulses: ablation thresholds and crater shape 7

Bánhelyi Balázs, Fekete Olivér, Sipos Áron, Szenes András, Tóth Emese, Vass Dávid, Csete Mária

Optimalizált nanoplazmonika 14

Biró László, Csehi András

A nátrium-jodid molekula fotogerjesztésének szabályozása terahertzes pulzusokkal..... 21

Buzády Andrea, Gálos Réka, Makkai Géza, Xiaojun Wu, Tóth György, Kovács László, Almási Gábor, Hebling János, Pálfalvi László

Magnéziummal adalékolt sztöchiometrikus lítium- niobát hőmérsékletfüggő dielektromos
paraméterei a terahertzes tartományon 27

Csontos János, Pápa Zsuzsanna, Nagyillés Bálint, Tóth Zsolt, Budai Judit

Femtosekundumos pumpa-próba ellipszometria 34

B. Fekete, M. Kiss, A. A. Shapolov, S. Szatmari, S.V. Kukhlevsky

Soft x-ray AR⁺ lasers and wake-field electron accelerators by using low-current capillary z-pinches
..... 39

Luca Fésűs, Ludovic Martin, Norbert Wikonkál, Márta Medvecz, Robert Szipőcs

Low concentration eosin staining for high chemical contrast nonlinear microscope mosaic imaging
of skin alterations in pseudoxanthoma elasticum 45

Roland Flender, Adam Borzsonyi, Viktor Chikan

Numerical simulations of THz pulse generation with two-color laser pulses in the 2.15-15.15 μm
spectral range 52

Roland Flender, Adam Borzsonyi, Viktor Chikan

Numerical study of terahertz pulse generation from few-cycle laser pulses in the mid-IR spectral
range..... 56

Tamás Gera, Eszter Nagy, Tamás Smausz, Zsolt Homik, Judit Kopniczky, Judit Budai, Tibor Ajtai, Rita Ambrus, Piroska Szabó-Révész, Béla Hopp	
Size reduction of drug particles by Pulsed laser ablation technique	59
Gombkötő Ákos, Varró Sándor, Keresztes Zoltán, Gábor Bence, Földi Péter	
A magasfelharmonikus-keltés kvantumoptikai vonatkozásai	64
Hack Szabolcs, Majorosi Szilárd, Benedict Mihály, Varró Sándor, Czirják Attila	
Egy-ciklusú, közeli infravörös lézerimpulzussal vezérelt Alagutazásos ionizáció fázisteres vizsgálata.....	69
Gábor Horváth, Andor Körmöczi, Tamás Szörényi, Zsolt Geretovszky	
The effect of seam geometry on properties of laser welded nickel coated stainless steel stripes	74
Illés Gergő, Sarkadi Balázs, Mészáros Anna, Tibai Zoltán, Pálfalvi László, Almási Gábor, Hebling János, Tóth György	
Terahertzes impulzusok előállítása leképzés nélküli mikrostrukturált lítium-niobát kristályban.....	81
Kasza József, Dombi Péter, Földi Péter	
Az atomi magasfelharmonikus-keltés polarizációfüggése diszkrét bázis esetén.....	87
Miklós Á. Kedves, Márk Aladi, József S. Bakos, Gábor Demeter, Gagik Djotyan, Péter Ignác, Béla Ráczkevi, Zsuzsa Sörlei, János Szigeti	
Laser particle acceleration technologies: probe laser beam diagnostics of extended plasmas	91
Kis Mariann, James Smart, Maróti Péter	
Citokrómok szerepe fotoszintetizáló bíborbaktériumokban	97
Kohut Attila, Horváth Viktória, Kéri Albert, Kopniczky Judit, Hopp Béla, Galbács Gábor, Geretovszky Zsolt	
Egy- és többkomponensű plazmonikus nanorészecskék szikra-plazma alapú előállítása és alkalmazásuk a felületerősített Raman spektroszkópiában	102
Kondász Bence, Hopp Béla, Smausz Kolumbán Tamás	
A vegyes szórás mint probléma LASCA perfúziós mérések esetén	108
Bence M. Kovács, Zoltán L. Horváth, Attila P. Kovács	
Investigation of ultrashort cladding pulses generated in single mode optical fibers	112
Zs. Kovács, B. Gilicze, S. Szatmári, I. B. Földes	
Nagy intenzitású ultraibolya lézerekkel keltett plazmák kontrasztfüggő abszorpciója és dinamikája	118
Andor Körmöczi, Gábor Horváth, Tamás Szörényi, Zsolt Geretovszky	
On the electrical resistance of laser joined metal sheets	125

Lenk Sándor, Sági-Kazár Máté, Illés Levente, Solymosi Katalin, Solti Ádám, Barócsi Attila	
Növényi minták fluoreszcencia lecsengési idejének vizsgálatai.....	132
Magashegyi István, Földi Péter	
Analitikus módszer szilárdtestekben lézerimpulzus által elmozdított töltések kiszámítására	137
Szilárd Majorosi, Mihály G. Benedict, Szabolcs Hack, Attila Czirják	
Orbital angular momentum of high harmonics generated by a neon jet excited with a strong twisted laser pulse.....	143
Mechler Mátyás, Bódog Ferenc, Ádám Péter	
Bináris időbeli multiplexelésen alapuló periodikus egyfotonforrások optimalizálása	150
Portik Attila, Kálmán Orsolya, Kiss Tamás	
Iterált harmadfokú kvantuminformaticai protokollok	157
Sarkadi Tamás, Holló Csaba, Erdei Gábor, Barócsi Attila, Galambos Máté, Koppa Pál	
Összefonódott fotonpár források fejlesztése	162
Áron Sipos, Rita Nagypál, Ferenc Sarlós, Géza I. Groma	
Vibrational relaxation demonstrated in nicotinamide adenine dinucleotide applying machine learning based analysis.....	168
Szabó Krisztián, Csehi András	
Többfotonos rezonancia-fokozott ionizációban kilépő elektronok dinamikus interferenciája	174
S. Szatmári, Z. Szántó, R. Bognár, R. Dajka, I. B. Földes	
Status of short-pulse KrF amplifier research and development at Hill, Szeged	181
Róbert Szipőcs, Luca Fésűs, Ádám Krolopp, Ernő Hettinger, Lajos Vass, Norbert Wikonkál, Péter Török, Gábor Molnár, Gábor Tamás	
20 MHz, sub-ps, tunable ti:sapphire laser system for real time, stain free, in vivo histology of the skin	188
Tóth A., Csehi A., Halász G.J., Vibók Á.	
Fotodisszociáció szabályozása THz pulzussal indukált Stark effektussal	192
Tóth György, Pálfalvi László, Tibai Zoltán, Krizsán Gergő, Fülöp József András, Almási Gábor, Hebling János	
Új generációs Terahertzes Impulzus források.....	199
Vukovity Krisztina, Grósz Tímea, Horváth Mercédesz, Kovács Attila Pál	
Nagy módusátmérőjű fotonikus kristálysál diszperziós görbéinek meghatározása ablakolt Fourier-transzformációs spektrális interferometriával	204
Névmutató	210

ELŐADÁSOK ÉS
POSZTEREK

Characterization of plasma reflectivity response of optical glasses processed by 34 fs pulses: analysis in the context of ablation parameters

Andrásik Attila^{1,2}, Flender Roland¹, Budai Judit¹, Szörényi Tamás¹, Hopp Béla¹

¹*Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, H-6720 Szeged, Dóm tér 9., Hungary*

²*Department of Photonics and Laser Research, Interdisciplinary Excellence Centre, University of Szeged, Szeged, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.1>

1.Introduction

One of the methods successfully applied for the improvement of the temporal contrast of ultrashort, high-intensity pulses is the plasma mirror (PM) technique [1]. An advantage of this approach is that it can effectively be utilized in the experiments applying strong-field of intensities higher than 10^{14} W/cm² with few cycle pulses, nevertheless, a bottleneck is the damage of the target surface due to the concomitant ablation: when working with high repetition rate, high-intensity systems [2] the target will rapidly be consumed, due to the shot-to-shot reduction of the area available. Commercially available, cheap target materials possessing appropriate plasma mirror characteristics, in best case together with the possibility of surface regeneration are needed to operate these systems. In order to allow a proper choice between attainable candidates, substantial knowledge of the response of the materials to the ablating laser pulse in general and the behavior of the transient reflectivity in particular is necessary.

All papers found in the literature are in accord in describing either the optical response or the ablation characteristics of the materials [3-18]. We did not find attempts to connect both aspects, therefore it is straightforward to expand our knowledge regarding it to properly select the most desirable targets for PM. This work was aimed at the determination of the plasma mirror related properties of three selected optical glasses, Borofloat, BK7 and B270 [19-21] through the measurement of the ablation characteristics and the evolution of the transient reflectivity when processed the glasses by single 34 fs pulses.

2.Experimental

The experimental setup of the single shot measurements is sketched in Fig. 1. The TeWaTi laser system of the department [22] based on a mode-locked Ti:Sapphire oscillator (Spectra-Physics RainbowTM) and a home-made Ti:Sapphire chirped pulse amplifier provided pulses with 34 ± 0.16 fs duration and 1 mJ energy at 800 nm central wavelength with a stability at the output of the amplifier better than 1% RMS for the experiments.

Eleven holes were ablated at each pulse energy. A Veeco DEKTAK-8 stylus profilometer was used to characterize the shape of the ablated holes. The diameter and depth data reported for each energy are averages of measurements performed on the respective 11 holes. The well-known method introduced by Liu [23] was applied to determine the actual diameter of the beam on the sample surface according to the expression:

$$D^2 = 2w^2 \ln(F/F_{th}), \quad (1)$$

where w is $1/e^2$ beam radius while F and F_{th} stand for the peak and ablation threshold fluences, respectively.

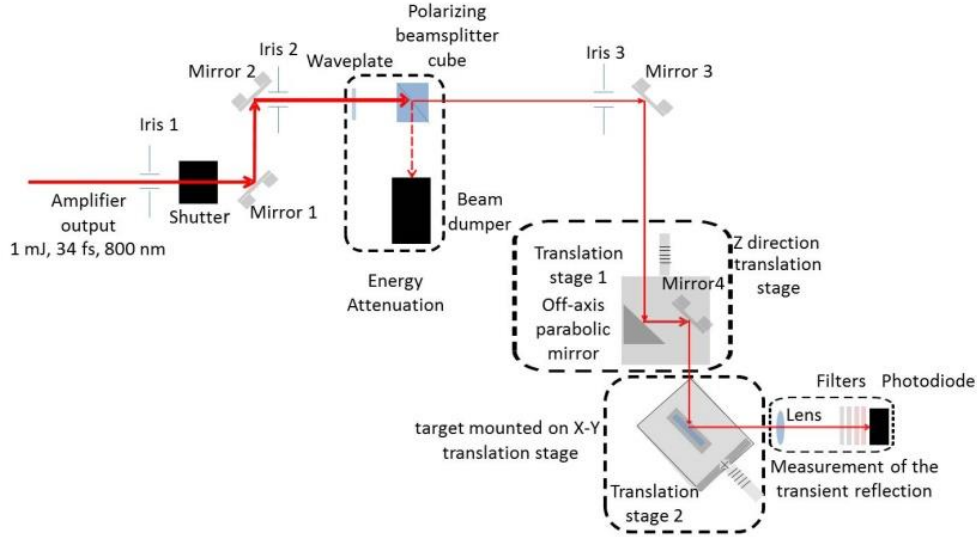


Fig. 1 Scheme of the setup (more details in [24])

3.Results

In Fig. 2 the diameter and the depth of the ablated holes are plotted together with the photodiode signal as a function of laser intensity for the three glass types investigated.

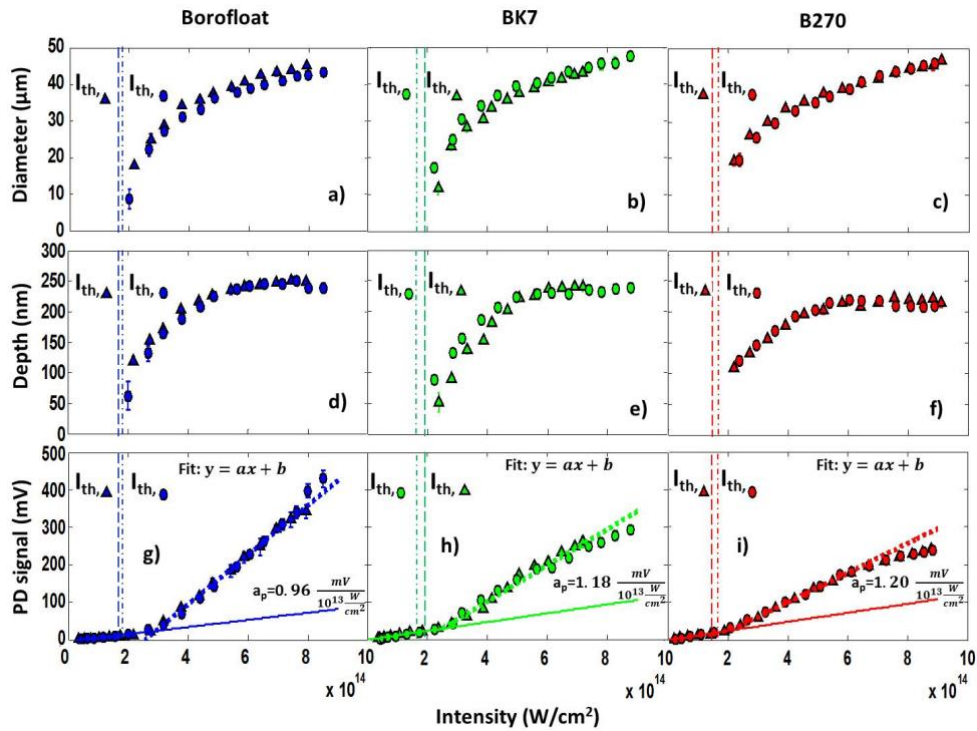


Fig. 2 Evolution of the ablation characteristics: diameter: a)-c) and the depth: d)-f), and the reflectivity g)-i) expressed in terms of photodiode recordings [more details also in [24]], process parameters: 34 ± 0.1 fs pulse duration and 25.5 ± 2 μm spot radius

As seen in Fig. 2 a)-f) very similar ablation characteristics were measured for all three glasses. The ablation threshold intensities (I_{th}), $1.72 \pm 0.06 \cdot 10^{14}$, $1.89 \pm 0.16 \cdot 10^{14}$ and $1.75 \pm 0.09 \cdot 10^{14}$ W/cm² for Borofloat, BK7 and B270, respectively, are equal within measurement error. Above the ablation threshold logarithmic dependence was found for the diameters, while the depths increase with increasing intensity showing saturation. The deviation of the measured reflectivity from the extrapolated permanent one (dotted vs. continuous lines in Fig. 2 g)-i) marks the emergence of the plasma mirror resulting in a steep increase in the reflectivity above the threshold [24]. For Borofloat glass the slope of the increase is the greatest, reaching maximal reflectivity enhancement of 400% distinguishing Borofloat as the most promising PM target. BK7 possesses the second highest slope with 200% increase in reflectivity, while the smallest slope appears for B270, exhibiting an enhancement of 150% only. The puzzling result is that while the glasses behave similarly from the point of view of ablation, the optical responses are different.

Discussion

In a quest for finding an explanation of the differences in the reflectivities, we tried to find any link between the amount of material removed and the evolution of reflectivity. In calculating the volume of the ablated material the shape of the ablated region was assumed to be an elliptic cylinder.

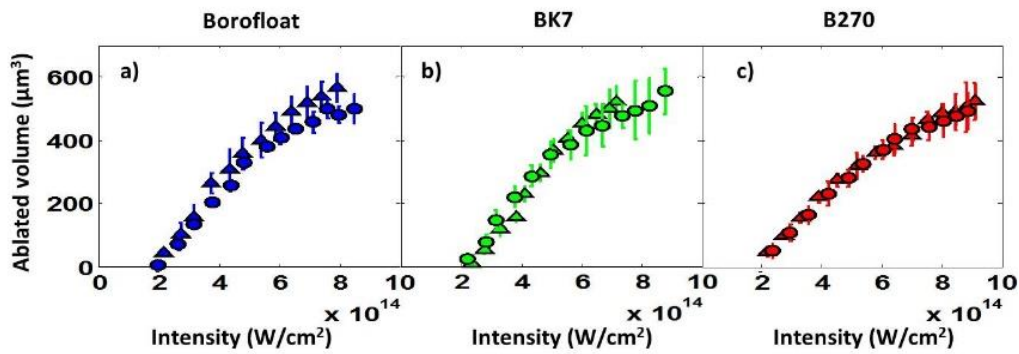


Fig. 3 The ablated volume vs. intensity functions for the three glass types

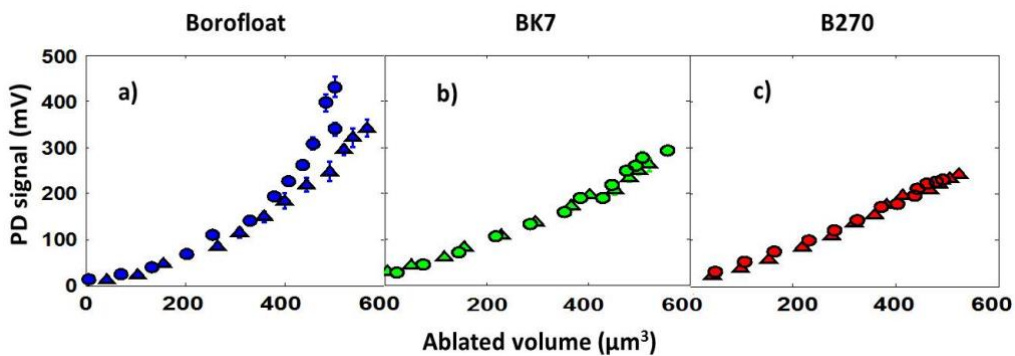


Fig. 4 The evolution of the reflected signal as a function of the ablated volume

The conclusion of the comparison is that while the three glasses behave akin from the point of view of ablation, demonstrated by the similarity of the curves in Fig. 3, their optical response depicted in Fig. 4 is different. As a corollary, it can be stated that the differences in the intensity dependence of the reflectivities cannot be correlated with the dependence of the ablated volume.

As another approach we adopted the idea of Grehn [25] for explaining the composition dependence of the plasma mirror characteristics by the difference in the average dissociation energies of the glasses: we estimated the average number of electrons, n_{av} , participating in the formation of 1 mole glass for describing the composition dependence of the reflectivity. In Table 1 the numbers of electrons calculated according to the molar concentration of all subunits together with the composition of the respective glasses are summarized.

Table 1: Composition and the n_{av} of the investigated glasses and fused silica

Material	Constituents (wt%)											n_{av}
	SiO ₂	B ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	ZnO	BaO	Al ₂ O ₃	As ₂ O ₃	TiO ₂	Sb ₂ O ₃	
BOROFLOAT^a	81	13	4		-	-	-	2	-	-	-	4.19
BK7^b	70	10	10	6	-	-	3	-	1	-	-	3.91
B270^c	69	-	8	8	7	4	2	-	-	1	1	3.48

^adata provided by Schott, ^bdata provided by Eksma Optics and [26], ^cdata from [27]

Good correlation was found in the variation in the time integrated plasma mirror reflectivity (400%, 200%, 150%) with the n_{av} involved in the glass formation (4.19, 3.91, 3.48) suggesting that this approach offers a plausible explanation for the differences observed in the reflectivity values of the three glasses investigated.

Conclusions

Borofloat, BK7 and B270 glasses behave similarly from the point of view of ablation with intensity thresholds within the $1.7\text{--}1.9 \times 10^{14}$ W/cm² domain and analogous evolution of the diameter and the depth of the ablated holes, while the optical response of the glasses is different: Borofloat is the most promising candidate for PM applications due to its highest transient reflectivity values as compared with BK7 and B270. While the difference in the behaviour of the transient reflectivities of the glasses cannot be correlated with their ablation parameters differences in the average number of electrons participating in the formation of 1 mole glass give a reasonable explanation for the differences in the reflectivities. The results of this study may help researchers and engineers to consider optical glasses as cheap alternatives to be used in PM experiments aimed at further improvement in the temporal contrast of the high repetition rate, high-intensity, ultrashort pulsed laser systems.

Acknowledgements

The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005**, “*Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems*”.

This work has also been supported by ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd. H-6720 Szeged, Dugonics tér 13; GINOP-2.3.6-15-2015-00001 and ELI_GINOP_4_0125 and The Ministry of Human Capacities, Hungary; grant 20391-3/2018/FEKUSTRAT.

The authors wish to thank Ádám Börzsönyi, Mikhail Kalashnikov and Csaba Vass from ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd. H-6720 Szeged, Dugonics tér 13 for valuable discussions.

References

- [1] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Pedrix, Ph. Martin, P. Audebert, J.C. Gauthier, J.-P. Geindre and T. Wittmann, *Phys. Rev. E* **69**, 026402 (2004)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.69.026402>
- [2] ELI-ALPS webpage: <https://www.eli-alps.hu/> (accessed at 11. 18. 2020)
- [3] Ch. Ziener, P.S. Foster, E.J. Divall, C.J. Hooker, M.H.R. Hutchinson, A.J. Langley and D. Neely, *J. of Appl. Phys.* **93**, 1 (2003) 768-770
<https://doi.org/10.1063/1.1525062>
- [4] Y. Nomura, L. Veisz, K. Schmid, T. Wittmann, J. Wild and F. Krausz, *New Journal of Physics* **9**, 9 (2007)
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/9/1/009>
- [5] T. Wittmann, J.P. Geindre, P. Audebert, R.S. Marjoribanks, J.P. Rousseau, F. Burgy, D. Douillet, T. Lefrou, K. TaPhuoc and J.P. Chambaret, *Rev. Sci. Instr.* **77**, 083109 (2006)
<https://doi.org/10.1063/1.2234850>
- [6] S. Inoue, K. Maeda, S. Tokita, K. Mori, K. Teramoto, M. Hashida and S. Sakabe, *Appl. Opt.* **55**, 21 (2016) 5647-5651
<https://doi.org/10.1364/AO.55.005647>
- [7] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf and P. Foster, *Rev. Sci. Instr.* **75**, 3 (2004) 645-649
<https://doi.org/10.1063/1.1646737>
- [8] B.C. Stuart, M.D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore and M. D. Perry, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 12 (1995) 2248-2251
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.2248>
- [9] W.Kautek, J.Krüger, M.Lenzner, S.Sartania, C.Spielmann, F.Krausz, *Appl. Phys. Lett.* **69** (1996) 3146
<https://doi.org/10.1063/1.116810>
- [10] D.Ashkenasi, A.Rosenfeld, H.Varel, M.Wahmer, E.E.B.Campbell, *Applied Surface Science*, **120** (1997) 65-80
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(97\)00218-3](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(97)00218-3)
- [11] J.Krüger, W.Kautek, M.Lenzner, S.Sartania, C.Spielmann, F, *Applied Surface Science*, **127-129** (1998) 892-898
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(97\)00763-0](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(97)00763-0)
- [12] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 18 (1998) 4076-4079
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.80.4076>
- [13] D.Giguère, G.Olivié, F.Vidal, S.Toetsch, G.Girard, T.Ozaki, J.C, *J. Opt. Soc. Am. A* **24**, 6 (2007) 1562-1568
<https://doi.org/10.1364/JOSAA.24.001562>

- [14] O. Utéza, B. Bussiére, F. Canova, J.-P. Chambaret, P. Delaporte, T. Itina and M. Sentis, Appl. Surf. Sci. **254** (2007) 799-803
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2007.09.046>
- [15] N. Sanner, O. Utéza, B. Chimier, M. Sentis, P. Lassondé, F. Légaré and J.C.Kieffer, Appl. Phys. Lett. **96**, 071111 (2010)
<https://doi.org/10.1063/1.3309700>
- [16] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal and J.C. Kieffer, Phys. Rev. B **84**, 094104 (2011)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.094104>
- [17] O. Utéza, N. Sanner, B. Chimier, A. Brocas, N. Varkentina, M. Sentis, P. Lassonde, F. Légaré, J.C. Kieffer, Appl. Phys. A **105**, (2011) 131-141
<https://doi.org/10.1007/s00339-011-6469-y>
- [18] M. Lenzner, J. Krüger, W. Kautek and F. Krausz, Appl. Phys. A **68**, (1999) 369-371
<https://doi.org/10.1007/s003390050906>
- [19] Borofloat specifications: <https://www.pgo-online.com/intl/borofloat.html> (accessed at 11. 18. 2020)
- [20] BK7 specifications: <https://www.pgo-online.com/intl/BK7.html> (accessed at 11. 18. 2020)
- [21] B720 specifications: <https://www.pgo-online.com/intl/B270.html> (accessed at 11. 18. 2020)
- [22] Webpage of the Department of Optics and Quantumelectronics: <http://opt.physx.u-szeged.hu/node/45> (accessed at 25. 11. 2020)
- [23] J. M. Liu, Opt. Lett. **7**, 5 (1982) 196-198
<https://doi.org/10.1364/OL.7.000196>
- [24] A. Andrásik, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Opt. Mater. Exp. **10**, 2 (2020)
<https://doi.org/10.1364/OME.380294>
- [25] M. Grehn, T. Seuthe, M. Höfner, N. Griga, C. Theiss, A. Mermillod-Blondin, M. Eberstein, H. Eichler and J. Bonse, Opt. Mat. Exp. **4**, 4 (2014) 689-700
<https://doi.org/10.1364/OME.4.000689>
- [26] H. Zhenguang, R. Srivastava and R. V. Ramaswamy, Journal of Lightwave Technology **7**, 10 (1989) 1590-1596
<https://doi.org/10.1109/50.39102>
- [27] J. Kent and M. Tsumura, US Patent US6236391B1.
<https://patents.google.com/patent/US6236391B1/en> (accessed at 11. 18. 2020)

Surface processing of optical glasses with 34 fs pulses: ablation thresholds and crater shape

Andrásik Attila^{1,2}, Flender Roland¹, Budai Judit¹, Szörényi Tamás¹, Hopp Béla¹

¹*Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, H-6720 Szeged, Dóm tér 9., Hungary*

²*Department of Photonics and Laser Research, Interdisciplinary Excellence Centre, University of Szeged, Szeged, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.2>

1. Introduction

Since the advent of availability of high-energy fs pulses [1], the peculiarities of the interaction of ultrashort laser pulses with matter are intensively studied. One effect attracting interest is that due to the ionization of transparent dielectrics, dense plasma is created on the surface with enhanced reflectivity [2-5] weakening the energy coupling efficiency, diminishing thereby the effectivity of the material removal [6,7]. For that reason, comprehensive description of ionization induced effects is highly required.

Due to its extraordinary optical and material quality, fused silica is the favourite material of the fs ablation studies [6, 8-10, 11-20]. Commercial multicomponent borosilicate and crown glasses received astonishingly little attention, even though they may serve as cheaper and more accessible alternatives.

Borofloat, BK7 and B270 optical glasses were studied in this work reporting an analysis of the evolution of the morphology and main geometrical properties of the ablated craters generated by ultrashort, high-intensity pulses. The evolution of the crater shape and depth is investigated in the context of accompanying ionization of the targets and a model based on multiphoton absorption of the incoming processing beam.

2. Experimental

A scheme about the locally developed arrangement to conduct the experiments is seen in Fig. 1. The driving laser for the presented PM experiment was a locally-developed Ti:Sapphire based chirped pulse amplification (CPA) system (TeWaTi laser system, [21]), which are able to deliver laser pulses with 1 mJ pulse energy, 34 fs pulse duration at 800 nm central wavelength. Uncoated optical glass pieces placed at an angle of incidence of 45° were applied as targets. Shot-to-shot repositioning of the target using translation stages served to ensure the ablation of pristine surface areas. The beam was focused onto the target with a parabolic mirror. The reflected beam was re-focused by a lens to totally overlap with the sensor area of the photodiode PD. The actual diameter of the beam on the sample surface was determined according to the formula:

$$D^2 = 2w^2 \ln (F/F_{th}), \quad (1)$$

where w is the $1/e^2$ beam radius, while F and F_{th} stand for the peak and ablation threshold fluences, respectively [22]. Both the diameter-regression technique (DR) based on the application of Eq. (1), and the multiphoton absorption-based fitting of the depth *vs.* fluence functions (MA), [9, 23], applying

$$d_{max} = \frac{\tau^{m-1}}{[(m-1)\alpha_m(1-R)^{m-1}]} * \left(\frac{1}{F_{th,dep}^{m-1}} - \frac{1}{F^{m-1}} \right), \quad (2)$$

with d_{max} as depth, m as the order, α_m as the non-linear absorption coefficient, τ as the pulse duration (actually 34 fs) and R as the measured linear reflection coefficient were used to derive the ablation thresholds.

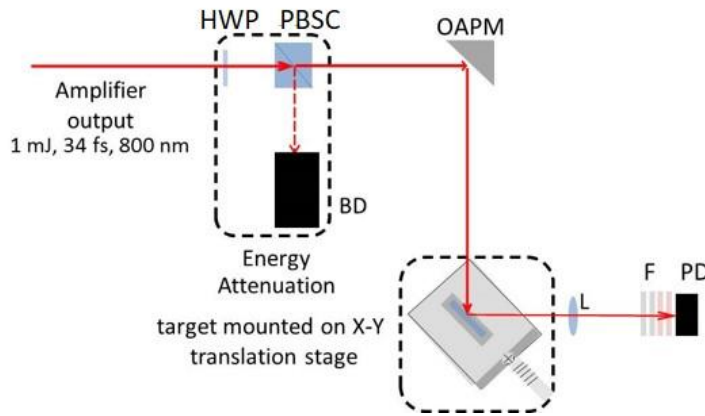


Fig. 1 Scheme of the setup (see details also in [24, 25]). HWP: half-wave plate; PBSC: polarization beam-splitter cube; BD: beam dumper; OAPM: off-axis parabolic mirror; L: focusing bi-convex lens; F: filters; PD: photodiode

3. Results

The profilometer traces recorded along the minor axes shown in Fig. 2 reveal that the shape of the craters follows reliably the Gaussian-like energy distribution of the processing beam for all three glasses with small differences in the morphology. For Borofloat and BK7 both the shape and the roughness of the craters remain essentially unchanged with increasing fluence. With the contour remaining smooth but the shape changing, B270 exhibits different evolution as a function of fluence: a bump evolves as the fluence increases resulting in slightly smaller depth at the center as compared to the maximum depth measured towards the edges.

In Fig. 3 the evolution of the diameter and the depth of the ablated craters are plotted as a function of fluence together with the part of the processing beam reflected from the irradiated area measured as the photodiode signal for the three glasses. In the whole fluence range investigated the well-documented logarithmic dependence (formulated in Eq. (1)) characterizes the evolution of the diameter values above threshold, reaching values around $45 \mu\text{m}$ at 30 J/cm^2 for all three glasses. Contrary to the diameters the depths increase with increasing fluence and show saturation starting at slightly different fluences: above 20, 17 and 18 J/cm^2 for Borofloat, BK7 and B270, respectively. Joining just above the ablation thresholds for all glasses the R_{norm} functions can be fitted by two straight sections with different slopes (a_p and a_t) (Fig. 3 g) - i)) marking a change in the optical response of the irradiated area at the breakpoint fluence. In the steep increase in the R_{norm} above the breakpoint the emergence of a plasma mirror materializes [25].

With values of 9.5, 10 and 8.0 J/cm² for Borofloat, BK7 and B270, respectively, the breakpoints differ only slightly for the three glasses and correlate well with the ablation thresholds [26], which supports further the feasibility of the DR, MA and R_{norm} approaches and justifies the statement that the ablation characteristics of the glasses investigated are rather similar.

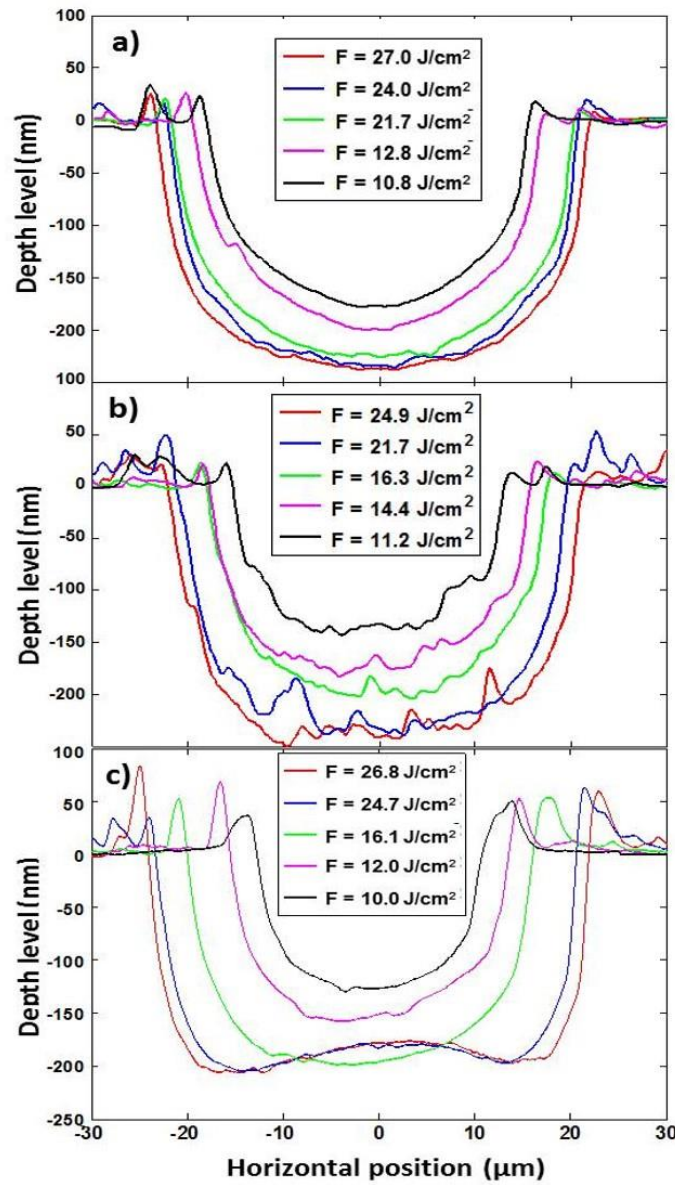


Fig. 2 Evolution of the cross sections along the minor axes of the craters ablated into a) Borofloat b) BK7 and c) B270 glasses. Beam radii on the surface: 25.1, 26.1 and 24.83 μm , respectively.

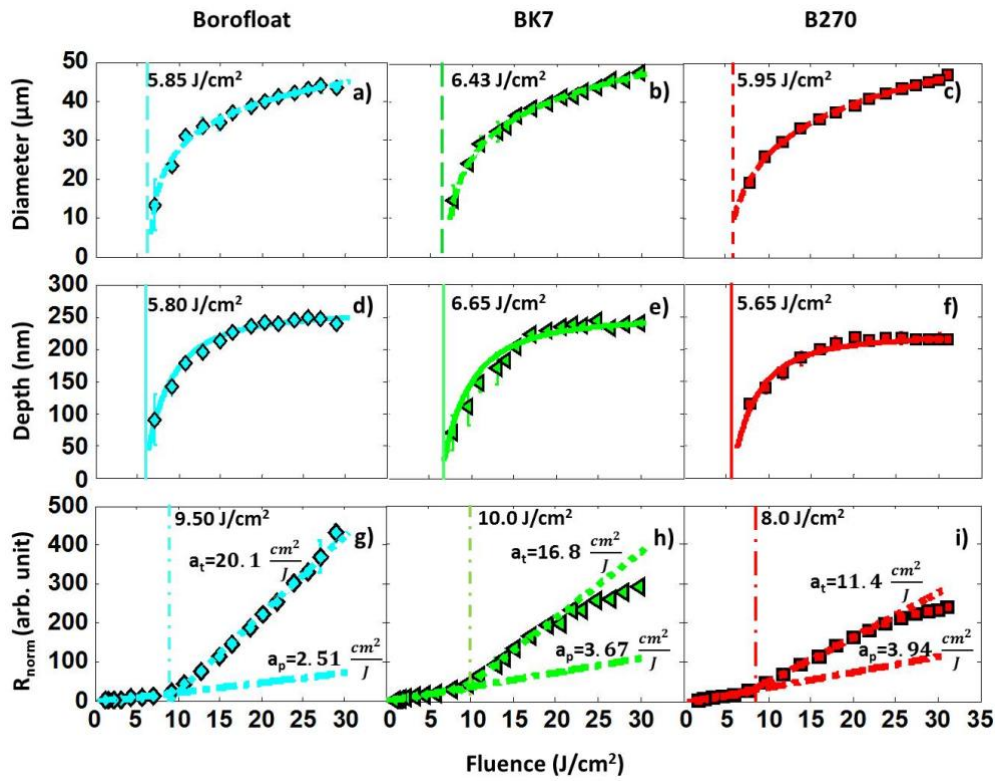


Fig. 3 Ablation and reflection characteristics of the glasses. Dashed curves in a)-c) are logarithmic fits, while continuous curves denote in d)-f) the MA fits according to Eq. (2). Dashed and continuous vertical lines mark the ablation thresholds derived from DR and MA fits, respectively. R_{norm} stands for normalized reflectivity. Dash-dotted vertical lines indicate the breakpoints between the two straight sections of the reflectivity, marking the onset of plasma formation. Dash-dotted and dotted lines with slopes a_p and a_t show the difference between the evolution of permanent and transient reflectivities in g)-i).

4. Discussion

Above a certain fluence only minor differences were observed in the shape of the craters ablated into Borofloat, BK7 and B270 glasses: a bump emerged in the middle of the bottom of the crater when processing B270 glass with pulses of fluences exceeding 24 J/cm^2 (cf. Fig. 2 c) which is an intriguing phenomenon not mentioned for fs ablation of glasses. Uteza [6] describes such bump formation at the bottom of the craters ablated into a fused silica target with 7 fs and 30 fs pulses developing with increasing fluence above 10 J/cm^2 . As an explanation for the bump formation transient reflectivity enhancement in the central part of the irradiated area [6] and saturation of nonlinear absorption at high fluence [7] could be considered. Concerning the crater dimensions, the logarithmic diameter vs. fluence functions and the saturation in depths compare favorably with the results recorded for glasses [23, 26, 27].

Three-photon absorption was considered when fitting Eq. (2) to the measured depth values (Fig. 3 d)-f)) [23]. The fit resulted in three photon absorption coefficients, α_3 : 6.45 , 6.35 and $8.28 \times 10^{-25} \text{ cm}^3/\text{W}^2$ for Borofloat, BK7 and B270, respectively. Comparing these figures with data available in the relevant literature we found that the α_3 values derived by Grehn [23] were two orders of magnitude higher than ours, which has several possible explanations: i) the absorption-shielding effect of the plasma might be reflected in the lower α_3 values obtained by us, ii) pulse shortening from ablating

with much shorter pulses as compared to Grehn's could result in less effective ablation [18, 27], and iii) our results refer to an intensity domain with increasing contribution from tunneling while in the case described by Grehn the three-photon absorption is more dominant.

5. Conclusions

The ablation threshold values derived from both the diameter- and multiphoton absorption-based fits proved to be equal within experimental error lying in the 6.1 ± 0.55 J/cm² domain with overlapping confidence intervals. The ablated crater shapes of Borofloat and BK7 behave similarly, while a bump emerges in the middle of the bottom of the crater dug into the B270 glass. The onset of plasma formation marked by the optical fluence thresholds well correlating with the ablation thresholds, is defined by the change in the reflectivity from the processed surface. The three photon absorption coefficients derived from the multiphoton absorption-based fit are also similar lying in the same magnitude for the glasses investigated. Along with the findings related to the ablation parameters, nonlinear absorption coefficients and reflectivity evolution, it can be stated that the fluence dependence of the ablation characteristics is the same with minor differences in the optical response of the glasses.

Acknowledgements

The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005**, "*Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems*".

This work has also been supported by ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd. H-6720 Szeged, Dugonics tér 13; GINOP-2.3.6-15-2015-00001 and ELI_GINOP_4_0125 and The Ministry of Human Capacities, Hungary; grant 20391-3/2018/FEKUSTRAT.

The authors wish to thank Ádám Börzsönyi, Mikhail Kalashnikov and Csaba Vass from ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd. H-6720 Szeged, Dugonics tér 13 for valuable discussions.

References

- [1] D. Strickland, G. Mourou, Opt. Comm. **56**, 3 (1985)
[https://doi.org/10.1016/0030-4018\(85\)90120-8](https://doi.org/10.1016/0030-4018(85)90120-8)
- [2] H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, A. Szoke, R. W. Falcone, Opt. Lett. **16**, 7 (1991)
<https://doi.org/10.1364/OL.16.000490>
- [3] Ch. Ziener, P.S. Foster, E.J. Divall, C.J. Hooker, M.H.R. Hutchinson, A.J. Langley, D. Neely, J. of Appl. Phys. **93**, 768 (2003)
<https://doi.org/10.1063/1.1525062>
- [4] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Pedrix, Ph. Martin, P. Audebert, J.C. Gauthier, J.-P. Geindre, T. Wittmann, Phys. Rev. E **69**, 026402 (2004)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.69.026402>
- [5] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, P. Foster, Rev. Sci. Instr. **75**, 645 (2004)
<https://doi.org/10.1063/1.1646737>

- [6] O. Utéza, N. Sanner, B. Chimier, A. Brocas, N. Varkentina, M. Sentis, P. Lassonde, F. Légaré, J. C. Kieffer, *Appl. Phys. A* **105**, 131-141 (2011)
<https://doi.org/10.1007/s00339-011-6469-y>
- [7] M. Lebugle, N. Sanner, O. Utéza, M. Sentis, *Appl. Phys. A* **114**, (2014)
<https://doi.org/10.1007/s00339-013-8153-x>
- [8] J. Krüger, W. Kautek, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, F. Krausz, *Proc. of SPIE Las. Applications in Microel. and Optoe. Manufacturing II* (1997)
<https://doi.org/10.1117/12.273740>
- [9] D. Puerto, J. Siegel, W. Gawelda, M. Galvan-Sosa, I. Ehrentraut, J. Bonse J. Solis, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 5 (2010)
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.27.001065>
- [10] L. Hoffart, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, N. Sanner, O. Utéza, M. Sentis, J.-C. Kieffer, I. Brunette, *Opt. Exp.* **19**, 1 (2011)
<https://doi.org/10.1364/OE.19.000230>
- [11] A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, H. Varel, M. Wahmer, E. E. B. Campbell, *Appl. Surf. Sci.* **127-129** (1998)
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(97\)00613-2](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(97)00613-2)
- [12] M. Lenzner, J. Krüger, W. Kautek, F. Krausz, *Appl. Phys. A* **68**, 3 (1999)
<https://doi.org/10.1007/s003390050906>
- [13] A. P. Joglekar, H. Liu, G. J. Spooner, E. Meyhöfer, G. Mourou A. J. Hunt, *Appl. Phys. B* **77**, 1 (2003)
<https://doi.org/10.1007/s00340-003-1246-z>
- [14] D. Giguère, G. Olivié, F. Vidal, S. Toetsch, G. Girard, T. Ozaki, J. C. Kieffer, *J. Opt. Soc. Am. A* **24**, 6 (2007)
<https://doi.org/10.1364/JOSAA.24.001562>
- [15] D. F. Farson, H. W. Choi, B. Zimmerman, J. K. Steach, J. J. Chalmers, S. V. Olesik, L. J. Lee, *J. Micromech. Microeng.* **18**, 3 (2008)
<https://doi.org/10.1088/0960-1317/18/3/035020>
- [16] N. Sanner, B. Bussiere, O. Utéza, A. Leray, T. Itina, M. Sentis, J.Y. Natoli, M. Commandré, *Proc. of SPIE*. **6881** (2008)
<https://doi.org/10.1117/12.762767>
- [17] N. Sanner, O. Utéza, B. Bussiere, G. Coustillier, A. Leray, T. Itina, M. Sentis, *Appl. Phys. A* **94**, 4 (2009)
<https://doi.org/10.1007/s00339-009-5077-6>
- [18] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, J.C. Kieffer, *Phys. Rev. B* **84**, 9 (2011)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.094104>
- [19] M. H. Shaheen, J. E. Gagnon, B. J. Fryer, *Laser Phys.* **24**, 10 (2014)
<https://doi.org/10.1088/1054-660X/24/10/106102>

- [20] S.-Z. Xu, C.-Z. Yao, W. Liao, X.-D. Yuan, T. Wang, X.-T. Zu, Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. B **385** (2016)
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2016.06.016>
- [21] Webpage of University of Szeged, Department of Optics and Quantumelectronics:
<http://opt.physx.u-szeged.hu/node/45> (accessed at 11. 26. 2020)
- [22] J. M. Liu, Opt. Lett. **7**, 5 (1982)
<https://doi.org/10.1364/OL.7.000196>
- [23] M. Grehn, T. Seuthe, M. Höfner, N. Griga, C. Theiss, A. Mermillod-Blondin, M. Eberstein, H. Eichler and J. Bonse, Opt. Mat. Exp. **4**, 4 (2014)
<https://doi.org/10.1364/OME.4.000689>
- [24] A. Andrásik, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Appl. Phys. A. **126**, 936 (2020)
<https://doi.org/10.1007/s00339-020-04122-z>
- [25] A. Andrásik, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Opt. Mater. Exp. **10**, 2 (2020)
<https://doi.org/10.1364/OME.380294>
- [26] I. Mirza, N. M. Bulgakova, J. Tomástík, V. Michálek, O. Haderka, L. Fekete, T. Mocek, Sci. Rep. **6** (2016)
<https://doi.org/10.1038/srep39133>
- [27] A. Ben-Yakar, R. L. Byer, J. of Appl. Phys. **96**, 9 (2004)
<https://doi.org/10.1063/1.1787145>
- [28] T. Itina, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, J. of Optoelect. and Adv. Mat. **12**, 3 (2010)

OPTIMALIZÁLT NANOPLAZMONIKA

Balázs Bánhelyi¹, Fekete Olivér², Sipos Áron³,
Szenes András², Tóth Emese², Vass Dávid², Csete Mária²

¹Szegedi Tudományegyetem, Számítógépes Optimalizálás Tanszék, Árpád tér 2, 6720 Szeged;

²Szegedi Tudományegyetem, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, Dóm tér 9, 6720 Szeged;

³Szegedi Biológiai Kutatóközpont, Biofizika Intézet, Temesvári krt. 62, 6720 Szeged; Magyarország.

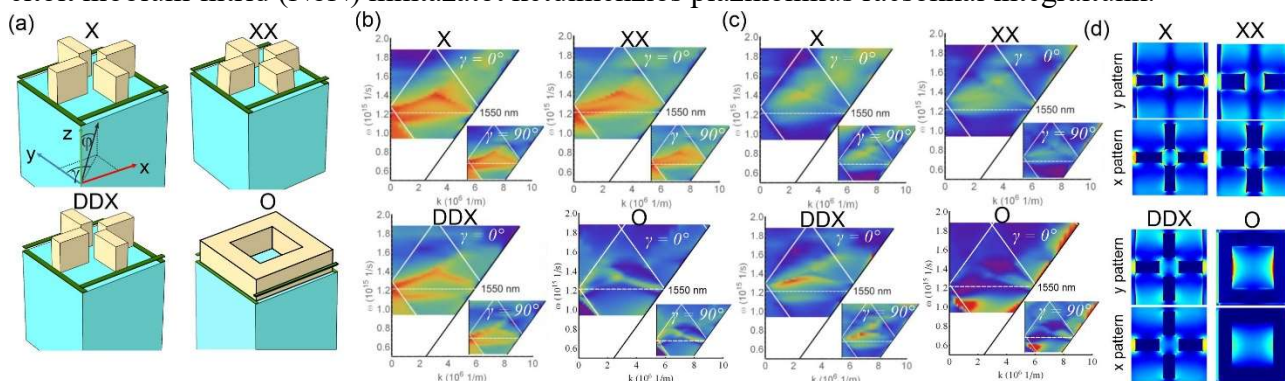
DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.3>

1. Bevezetés

A fény-anyag kölcsönhatás jelenségei optimalizálhatók a plazmonikus spektrumszerkesztés elveinek megfelelően tervezett nanorezonátorok alkalmazásával. Az individuális nanorezonátorok kivilágítási konfigurációjának valamint a periodikus és komplex struktúrák diszperziós karakterisztikájának tervezéséhez új numerikus eljárást dolgoztunk ki. Az optimális paraméterek biztosításához megfogalmazott célfüggvények és kritériumok alkalmazása lehetővé tette egyfoton detektorok abszorpciójának maximalizálását a polarizáció szelektivitás maximalizálásával és minimalizálásával; egyfoton források spontán emissziójának erősítését és szupersugárzás elérését; individuális, periodikus és komplex struktúrák tervezését, amelyekkel a fluoreszcens festékek fénykibocsátása a gerjesztés és az emisszió együttes erősítésével maximalizálható. A módszer lehetővé teszi hatékony egyfoton források és detektorok létrehozását a kvantuminformatikai alkalmazások céljaira, valamint plazmonikus bio-platformokon a szenzorizációs specifikusság és érzékenység javítását.

2. Plazmonikus struktúrával integrált egyfoton detektorok

A szupravezető nanohuzalokon alapuló egyfotondetektorok (superconducting nanowire single photon detectors: SNSPD) optimalizálását először az abszorpció (A-SNSPD) valamint a polarizációkontraszt maximalizálására valósítottuk meg, utóbbit a párhuzamosan teljesítendő abszorpcióra vonatkozó kritériummal (C-SNSPD) és anélkül (P-SNSPD). Az A-SNSPD-vel elérhető legnagyobb abszorpció 95%, a C-SNSPD esetében korrelációkat mutattunk ki a konfigurációs paraméterek között, a P-SNSPD-vel elérhető legnagyobb polarizáció kontraszt 10^{13} nagyságrendű volt [1-2]. Az SNSPD hatásfokot polarizáció-függetlenül törésmutató kontrasztot kompenzáló anyagokkal, spirális huzalokkal, és keresztezett nanohuzal mintázatokkal növelték meg korábban. A plazmonikus erősítés polarizáció specifikusságának figyelembe vételével két egymásra merőleges és vertikálisan eltolódott nióbbium-nitrid (NbN) mintázatot kétdimenziós plazmonikus rácsokkal integráltunk.



1. ábra

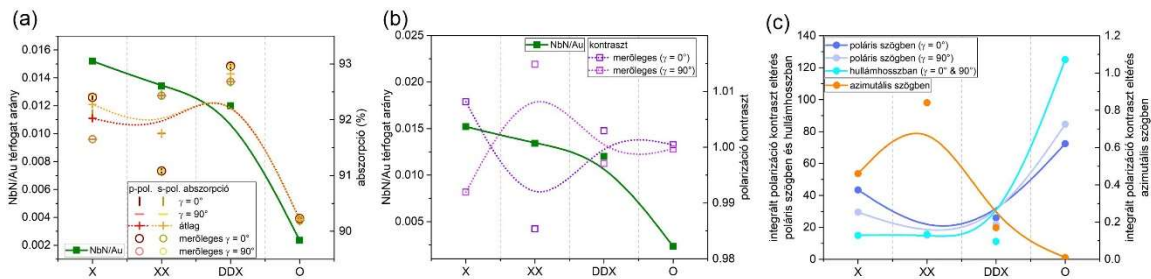
Polarizációtól függetlenül nagy abszorpció biztosítására tervezett (a) NCTAI-X & XX, NCDIAI-X & NCTDAI-O típusú detektorok, az optimalizált rendszerek diszperziós karakterisztikája (b) p-polarizált abszorpcióban és (c) polarizáció kontrasztban, (d) a közeleltér eloszlása az abszorpció maximumoknál.

A (nanocavity-trench-array-integrated) NCTAI-X/XX-SNSPD-ben a periodikus mintázatok a szubsztrát síkja felett helyezkednek el, míg a nanoüreg vertikális falai merőlegesek/szöget zárnak be a határfelülethez képest. A (nanocavity-double-deflector-array-integrated) NCDDAI-X / (nanocavity-trench-deflector-array-integrated) NCTDAI-O-SNSPD-ben a vertikális szegmensek a szubsztrátba mélyülnek mindkét / az egyik aranyrácsban, továbbá a geometria paramétereit az x és az y tengely mentén csak vertikális / minden irányban egymástól függetlenül variáltuk (1(a) ábra).

A diszperziós karakterisztika feltételes optimalizálása lehetővé tette azon integrált detektor paraméterek meghatározását, amelyekkel nagy abszorpció ($A > 0.9$) és egységhez közeli polarizáció kontraszt (PC ~ 1) érhető el közel merőleges beesésben egy plazmonikus áteresztő sávon belől, a p-polarizáció esetében az MIM módusokkal csatolással erősítve (1(b) és 1(c) ábrák).

A vertikális falú NCTAI-X köztes abszorptanciát mutat a legnagyobb sáv szélesség mellett (2(a) ábra). A döntött falú NCTAI-XX mutatja a legkisebb poláris szögben integrált PC-t azonban ezt köztes abszorpció, köztes hullámhosszban és legnagyobb azimutális szögben integrált PC kíséri (2(b) és 2(c) ábrák). Az NCDDAI-X teszi lehetővé a legnagyobb abszorpció elérését zérus elhangolással és közel egységnyi PC értéket merőleges beesésnél a legszélesebb spektrális tartományban, továbbá köztes azimutális szögben, de legkisebb hullámhosszban integrált PC értéket. Hátrányai a döntésre való érzékenység, és a kis sáv szélesség az abszorpcióban.

Újabb vizsgálataink szerint az NCTDAI-O abban az esetben tud kompetitív lenni, amikor az MIM üregek hosszát kompenzáljuk, amely lehetővé teszi az egységhez közeli abszorpció elérését. Az NCTDAI-O mutatja a legkisebb átlagos NbN abszorpciót és sáv szélességet, a legnagyobb poláris szögben és hullámhosszban integrált PC értéket, azonban a legalacsonyabb azimutális szögben integrált PC devianciájának és szegmens specifikus érzékenységének köszönhetően specifikus alkalmazások céljaira megfelelő választásnak bizonyulhat.



2. ábra

A vizsgált SNSPD rendszerekben az NbN/Au korrelációja az (a) NbN abszorpció és (b) polarizáció kontraszt értékekkel; (c) az integrált polarizációkontraszt értékek.

3. Plazmonikus nanorezonátorokkal erősített egyfoton források

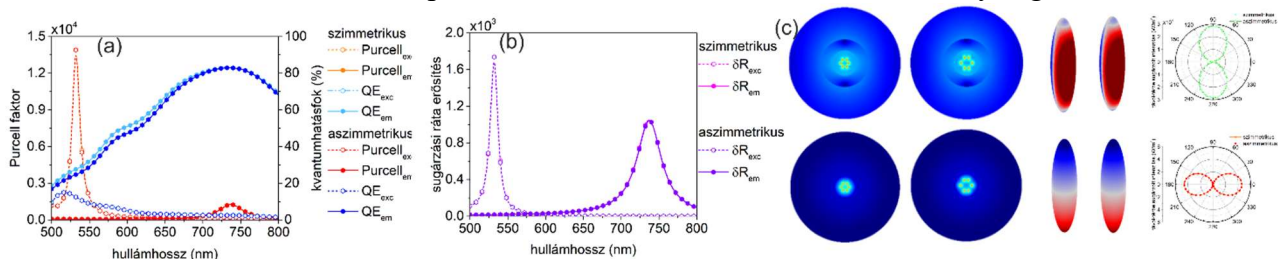
A gyémántba implementálható nitrogén (NV) és szilícium (SiV) színcentrumok emissziójának erősítésére különböző individuális és dimer plazmonikus nanorezonátorokat terveztünk. A gerjesztés és emisszió hullámhosszán megadott teljes sugárzási ráta erősítések (P_x faktor) és az emisszió megadott korrigált kvantumhatásfok (cQE) szorzatának maximalizálása vezetett a leghatékonyabb konfigurációkra. Gyémánttal bevont ezüst és arany individuális és dimer nanorudakat, valamint ezüst és arany héjba zárt gyémánt magot tartalmazó nanorezonátor konfigurációkat optimalizáltunk a színcentrumok emissziójának erősítésére. Az ezüst nanorezonátorokkal a gerjesztés is erősíthető, ugyanakkor mindkét fém alkalmas az emisszió erősítésére. Az emisszió erősítése mellett az SiV színcentrum intrinsic kvantumhatásfokánál jobb hatékonyságot mutató csatolt emitter-nanorezonátor rendszerek is tervezhetők specifikus kvantuminformatikai célokra [3, 4].

Szuperradiancia akkor következik be, amikor N emitter kooperativitásának eredményeként a sugárzási ráta N -szeresére növekedik, így az emisszió N^2 -el lesz arányos. Plazmonikus Dicke effektus szilárd fém nanorészecskék körül elrendezett, és mag-héj nanorezonátorokba helyezett emitterek esetében is előidézhető. A konvex mag-héj nanorezonátorokban a több mediáló plazmonikus módus létezése miatt az irodalom szerint elérhető ráta $N/3$ -al arányos. A konkáv nanorezonátoroknál a sugárzás távöltérbe jutását is biztosítani szükséges.

Az SiV színcentrumok ideális jelöltek kooperatív fluoreszcencia (szupersugárzás) demonstrálására is a gerjesztésen és emisszióan egymásra merőleges dipólusmomentumuknak köszönhetően. Gyémánt-ezüst (csupasz) és gyémánt-ezüst-gyémánt (bevont) nanorezonátorokat optimalizáltunk, amelyekben 4 vagy 6 SiV színcentrumot helyeztünk el szimmetrikus és aszimmetrikus rektanguláris és hexagonális mintázatban (csupasz/bevont_SiV darabszám formátumban hivatkozva).

A szférikus és ellipszoidális geometria összehasonlítása során az állításokat az ellipszoidális geometriára fogalmaztuk meg. A csupasz/bevont ellipszoidális nanorezonátorok kisebb/nagyobb kvantumhatásfokot és nagyobb Purcell faktor tesznek lehetővé a két/egy nagyságrenddel nagyobb felhalmozott töltéssűrűségnek megfelelően, így nagyobb gerjesztési ráta növekedést eredményeznek (kivéve az aszimmetrikus mintázat a bevont_6 nanorezonátorokban). A nagyobb kvantumhatásfok, kétszer/egy nagyságrenddel kisebb töltéssel korreláló kisebb Purcell faktor kisebb emisszió erősítést és távöltérbe kisugárzást tesz lehetővé (3. ábra).

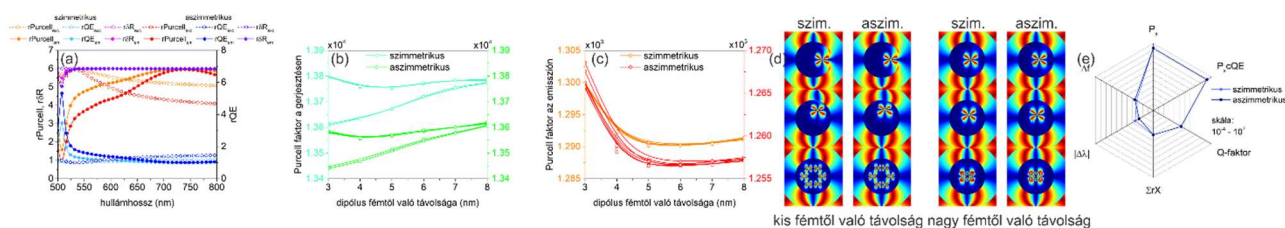
A spektrális válaszok félértékszélessége nagyobb, ennek megfelelően a Q faktor több mint kétszer kisebb, ami jobban definiált bad-cavity karakterisztikát bizonyít. Az ellipszoidális nanorezonátorok nagyobb frekvenciahúzást mutatnak a kisebb Q faktornak köszönhetően, ami korrelál a jobb szuperradiancia jóssággal. A szuperradiancia minden nanorezonátorral széles tartományban elérhető (4(a) ábra). A lasing jelenség szempontjából fontos vonalszélesség csökkenés is megfigyelhető minden szimmetrikus mintázat esetében (kivéve a bevont_4 ellipszoidális nanorezonátort). Aszimmetrikus mintázatokra vonalszélesség csökkenés a csupasz (szférikus) ellipszoidális nanorezonátorokban (sugárzási ráta növekményben) Purcell faktorban figyelhető meg, míg a bevont nanorezonátorok közül csak az ellipszoidálisok esetében, de ott mindkét mennyiségben bekövetkezik.



3. ábra

A legjobb szuperradiancia karakterisztikát mutató 6 SiV színcentrumot szimmetrikus és nem-szimmetrikus elrendezésben tartalmazó csupasz nanorezonátorok (a) kvantumhatásfoka és Purcell faktora, (b) sugárzási ráta erősítése, (c) a létrejövő töltés, közeltér és távöltér eloszlás.

Kimutattuk, hogy a szimmetrikus és nem-szimmetrikus mintázatban elhelyezett 4 SiV színcentrum megkülönböztethetetlen. Ezzel ellentétben a 6 SiV színcentrum a gerjesztésen két megkülönböztethető, 2- és 4-szeres degenerációt mutató ágra hasad, amelyek a csupasz / bevont esetekben eltérő / hasonló Purcell faktor tendenciát mutatnak a szférikus és ellipszoidális nanorezonátorokban (4(b) és 4(c) ábrák). Ennek oka a mező távolságfüggő át polarizálása (4(d) ábra). A szuperradiancia jellemzésére választott 6 mennyiség (P_x , P_{xQE} , Q , $\Sigma\delta X$, $\Delta\lambda$, Δf) mindegyike jobb az ellipszoidális nanorezonátorokban, kivéve az elhangolás néhány optimalizált esetben. Mindezek alapján az ellipszoidális nanorezonátorok javasolhatók szupersugárzás elérésére (4(e) ábra).



4. ábra

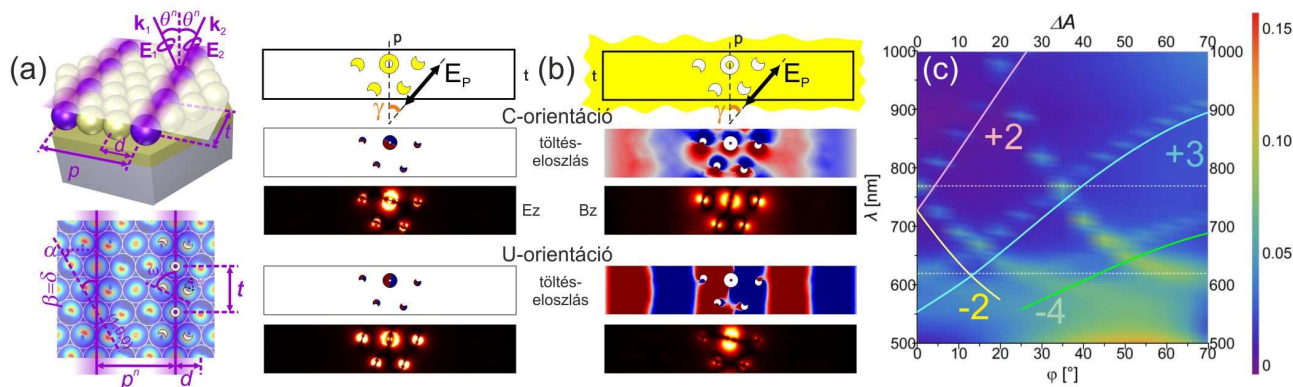
A legjobb szuperradiancia karakterisztikát mutató 6 SIV színcentrumot szimmetrikus és nem-szimmetrikus elrendezésben tartalmazó csupasz nanorezonátorok (a) relatív optikai jel erősítés, (b) Purcell faktor távolságfüggése a gerjesztésen és (c) emisszió, (d) átpolarizálás jelenségének távolságfüggése, (e) a szuperradiancia jósága.

Az analóg szimmetrikus mintázatokat tartalmazó szférikus nanorezonátorokhoz képest megfogalmazva az állításokat az aszimmetrikus mintázatokat tartalmazó nanorezonátorokra: a gyémánt-fém mag-héj nanorezonátorokban kisebb P_x és $P_x \cdot cQE$, míg a jobban definiált bad-cavity karakterisztikával hatékonyabb szuperradiancia érhető el, de nagyobb elhangolással. Ezzel ellentétben a gyémánttal bevont mag-héj nanorezonátorokban minden reláció megfordult, kivéve a szuperradiancia hatékonyságát, ami nem mutat mintázat szimmetriától függést.

A nem-szimmetrikus mintázatok a csupasz ellipszoidális rezonátorokban kisebb (ugyanakkora) P_x és $P_x \cdot cQE$ értéket, jobban definiált bad-cavity karakterisztikát, jobb szuperradiancia hatékonyságot, és kisebb elhangolást eredményeznek négy (hat) színcentrum esetében. A négy (hat) emitter nem-szimmetrikus mintázatot tartalmazó gyémánttal bevont ellipszoidális nanorezonátorokban ugyanakkora (nagyobb) P_x és $P_x \cdot cQE$ érték kisebb elhangolással és hatékonyabb szuperradiancia megvalósítással érhető el a kisebb (nagyobb) Q faktoral összhangban (ellentmondásban) (4. ábra).

4. Komplex plazmonikus struktúrák emitterek erősítésére

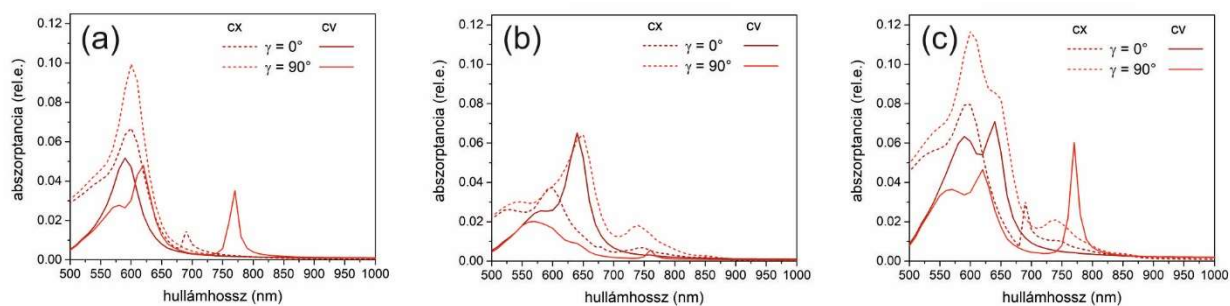
A kolloidgömb monorétegek interferáló nyalábokkal történő kivilágításával megvalósítható integrált litográfiával létrehozható komplementer konkáv és konvex nano-objektumokból felépülő struktúrák spektrális és köztérbeli hatásait vizsgáltuk. Olyan komplex struktúrákat tanulmányoztunk, amelyek a 100 nm átmérőjű arany kolloidgömbök 60° azimutális orientációban elhelyezett monorétegének 400 nm-es cirkulárisan polarizált fénnel történő kivilágításával hozhatók létre, két 12.83° szögben beeső interferáló nyalábbal (5. ábra) [5, 6].



5. ábra

(a) Az integrált litográfia realizálása cirkulárisan polarizált fénnel és a létrehozható mintázatok karakterisztikus geometriai paraméterei, (b) a komplex struktúrák egységcellája, töltés és köztér eloszlás a globális maximumoknál a C (felől) és U (alól) rezonanciát eredményező azimutális orientációban a (balról) konvex és (jobbról) konkáv $p=900$ nm periódusú mintázaton, (c) a $p=900$ nm periódusú konkáv mintázat diszperziós karakterisztikája.

A spektrumszerkesztésre alkalmas lehetőségek demonstrálása céljából az analóg minimintázatokból felépülő konvex és konkáv $p=900$ nm periódusú rektanguláris struktúrákat p-polarizált fénnel világítottuk ki komplementer azimutális orientációkban. A 0° és 90° azimutális orientációkat vizsgáltuk az elfogatott nanoholdakon ún. „U” és „C” típusú lokalizált felületi plazmon rezonanciát (Localized Surface Plasmon Resonance: LSPR) hatékonyabban eredményező 16° és 106° helyett, mivel a rektanguláris mintázatokon ezekben az irányokban leghatékonyabb a rács-csatolás. A vizsgált spektrális tartományban a $p=900$ nm struktúra periódus okozhat csatolást, míg a $t=173$ nm vertikális periódus nem eredményez modulációt. A \mathbf{k}_p vektorral párhuzamosan kisugározott fotonikus módus a 0° azimutális orientációban a konvex mintázaton eredményezhet rács-csatolást (Surface Lattice Resonance), míg a konkáv mintázatokon a terjedő SPP módus a \mathbf{k}_p rács-vektorral 90° azimutális orientáció esetében csatolható (5. ábra).



6. ábra

Centrális nanogyűrűből, (b) nanoholdakból és (c) az ezekből képezett minimintázatokból felépülő $p=900$ nm periódusú rektanguláris struktúrák abszorptanciája a komplementer azimutális orientációkban.

A konvex és konkáv centrális nanogyűrűből képezett rektanguláris struktúrán a periódustól függetlenül egy maximum (600 nm és 590 nm) jelenik meg a 90° és 0° ($\sim C$) azimutális orientációban. A konvex mintázaton a 0° ($\sim U$) azimutális orientációban az LSPR-hez (600 nm) közeli spektrális tartományban SLR eredetű maximum jelenik (690 nm) meg. A konkáv gyűrű-mintázaton a 90° ($\sim U$) azimutális orientációban lokális-globális maximumpár jelenik meg (580 nm, 620 nm) a lokalizált rezonancia valamint a periodikus struktúrán terjedő SPP harmadrendben csatolása hatására. Mindemellett egy lokális maximum is megfigyelhető (770 nm), ami SPP másodrendű rács-csatolására vezethető vissza. Ezen fotonikus (plazmonikus) csatolások azért hatékonyak, mert 0° (90°)-ban oszcillál az \mathbf{E} -mező a p periódushoz tartozó \mathbf{k}_p rácsvektorra merőlegesen (párhuzamosan) (6a. ábra).

A 6 konvex (konkáv) nanoholdból képezett mintázatot tartalmazó rektanguláris struktúrán a periódustól függetlenül két maximum között egy váll (530nm-590nm-650nm) (egy váll és egy maximum (580nm-640nm)) jelenik meg a 90° (0°) ($\sim C$) azimutális orientációban. A lokális – globális maximum az irodalom szerinti C2 és C1 rezonanciához tartozik, a C2 rezonancia a konkáv mintázat abszorpcióján a film abszorpciójának kivonása miatt nem azonosítható. Az 0° (90°) ($\sim U$) azimutális orientációban a részecske plazmon rezonancia (530 nm) után egy széles maximum jelenik meg (600 nm (570 nm)), amely az irodalom szerinti U rezonanciához tartozik. Mindemellett kisebb moduláció (675 nm (640 nm)) is megfigyelhető a konvex (konkáv) mintázaton, azonban ennek szimmetria okból nem rács-csatolás az oka. A nanogyűrűtől eltérően a 0° (90°) ($\sim U$) azimutális orientációban a maximum modulációjához az vezet, hogy a vertikális (horizontális) irányban oszcilláló \mathbf{E} -mező lehetővé teszi a C1 rezonancia kereszt-csatolását. A további lokális maximum (750 nm (760nm)) közeledő csatolásra és a fotonikus (plazmonikus) módus gyenge másodrendben szórására vezethető vissza (6b. ábra).

A minimintázatok spektrális válasza a centrális nanogyűrű és szatellita nanoholdak válaszához összevetve csak kismértékben különbözik, ami arra utal, hogy a nano-objektumok között csak gyenge csatolás van. A holdak C2-C1 rezonanciája, valamint a gyűrűn és minimintázaton U orientációban bekövetkező LSPR és SPP harmadrendű csatolás hatására megjelenő modulációk nagyon hasonlóak (6c. ábra).

Minden struktúrára teljesül, hogy a konvex abszorptancia $0^\circ/90^\circ$ azimutális orientációban megfeleltethető a konkáv abszorptanciának $90^\circ/0^\circ$ azimutális orientációban, továbbá a töltés és közeltér eloszlások is komplementerek. Az eredmények igazolják, hogy az integrált litográfiával létrehozható mintázatokkal plazmonikus spektrumszerkesztés valósítható meg. EOT jelenség érhető el kontrollálható polarizáció érzékenységgel specifikus spektrális tartományokban. További vizsgálatok vannak folyamatban a geometria paraméterek variálásával determinálható meta-anyag karakterisztika feltérképezése céljából.

5. Összefoglalás

A kétdimenziós plazmonikus rácsok egyfoton detektorokba integrálásával megvalósítható az abszorpció maximalizálása és a polarizáció kontraszt is kontrollálható szimultán. Az egyfoton források plazmonikus nanorezonátorokban erősítéskor a nem-kooperatív fluoreszcencia növekedés / szupersugárzás optimalizálásához előnyösebb a nagyobb számú emitter, bevont/csupasz szférikus és csupasz/bevont ellipszoidális kompozíció, és az ellipszoidális geometria. A komplex struktúrákon is teljesül, hogy a konvex abszorptancia (reflectancia/transmittancia) komplementer azimutális orientációban megfelel a konkáv abszorptancia (transmittancia/reflektancia) jelnek, ami bizonyítja, hogy a komplementer mintázatokat komplementer nyalábokkal kivilágítva az optikai válaszok felcserélődnek a Babinet elvnek megfelelően. Mindemellett a töltés és közeltér eloszlása is analóg a komplementer orientációban, ami lehetővé teszi fluoreszcens emitterek kontrollált erősítését.

Köszönetnyilvánítás

A projekt a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal támogatásával, az NKFI Alapból, „Optimalizált nanoplazmonika” (K116362) és az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával „Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben” EFOP-3.6.2-16-2017-00005 valósul meg.

Irodalom

- [1] M. Csete, A. Szenes, D. Marácz, B. Bánhelyi, T. Csentes, and G. Szabó, IEEE Photonics J. **9**, 2, 1-11 (2017)
<https://doi.org/10.1109/JPHOT.2017.2690141>
- [2] B. Tóth, A. Szenes, D. Marácz, B. Bánhelyi, T. Csentes, and M. Csete, IEEE J. Sel. Top. Quant. **26**, 3, 3900309 (2020)
<https://doi.org/10.1109/JSTQE.2020.2987131>
- [3] A. Szenes, B. Bánhelyi, L. Zs. Szabó, G. Szabó, T. Csentes, and M. Csete, NPG Sci. Rep. **7**, 13845 (2017)
<https://doi.org/10.1038/s41598-017-14227-w>
- [4] D. Vass, A. Szenes, B. Bánhelyi, T. Csentes, G. Szabó, M. and Csete, Opt. Express, **27**, 22, 31176-31192 (2019)
<https://doi.org/10.1364/OE.27.031176>

[5] Á. Sipos, E. Tóth, O. Fekete, and M. Csete, Plasmonics, (2020) <https://rdcu.be/caSJJ>,
<https://doi.org/10.1007/s11468-020-01235-2>

[6] E. Tóth, Á. Sipos, O. Fekete, and M. Csete, Plasmonics, (2020) <https://rdcu.be/caL6q>,
<https://doi.org/10.1007/s11468-020-01298-1>

A NÁTRIUM-JODID MOLEKULA FOTOGERJESZTÉSÉNEK SZABÁLYOZÁSA TERAHERTZES PULZUSOKKAL

Biró László¹, Csehi András¹

¹Debreceni Egyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, 4026 Debrecen Bem tér 18, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.4>

1. Bevezetés

Intenzív elektromágneses térbe helyezett molekuláris rendszerek belső magdinamikai folyamatainak szabályozása az utóbbi években a tudományos érdeklődés középpontjába került [1-4]. A különböző kontroll sémák közül kiemelt jelentőséggel bír a dinamikus Stark-effektuson alapuló vizsgálati módszer. Ennek lényege, hogy a molekulák potenciális energia felületeinek (PEF) alakja erős lézertérrel módosítható a Stark-eltolódás révén és ezáltal az atommagok mozgása szabályozhatóvá válik. A lézerpulsus paramétereinek megfelelő megválasztásával elérhető a potenciális energia felületek kívánt irányú torzítása ezáltal pedig a magok pályájának alakítása. Így módon az alkalmazott pulzus időlefolrásának, központi frekvenciájának, intenzitásának, vagy éppen az időkésltetésének finomhangolásával kontrollálhatóvá válik molekulák fotodisszociációja [2], fotogerjesztése [3], ultragyors időskálán ($\text{fs}=10^{-15}$ s) lezajló nemadiabatikus dinamikája [1,2,4]. A femtoszekundumos lézerek megjelenésével széles körben elterjedtek a magok mozgásának leképezésére illetve kontrollálására irányuló elméleti és kísérleti munkák. Lévéen, hogy a magok mozgása tipikusan a femto- és pikoszekundumos (10^{-15} s – 10^{-12} s) időskálán történik, a terahertzes (THz= 10^{12} Hz) tartományba eső lézerpulsusok kiválóan alkalmas eszköznek mutatkoznak molekuláris folyamatok Stark-szabályozására.

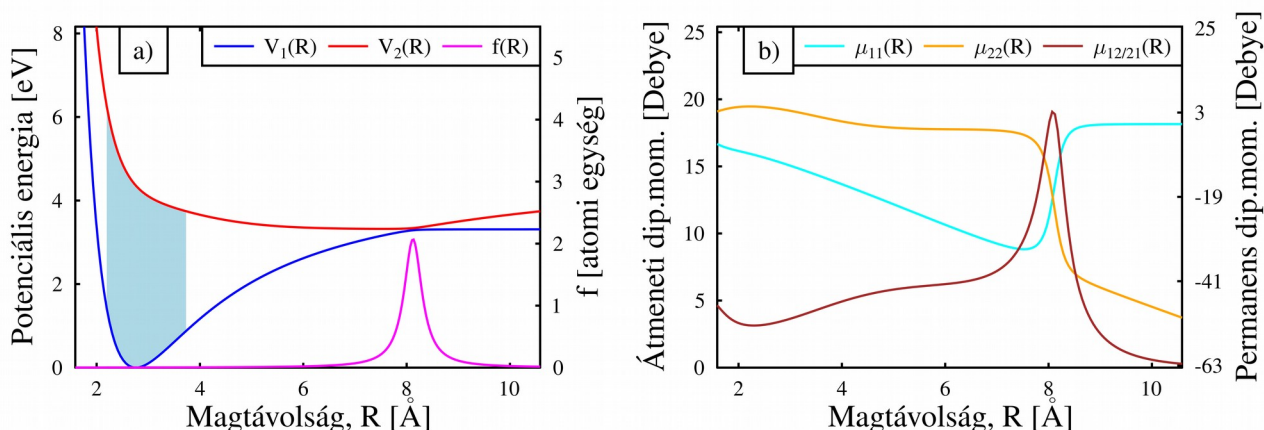
Jelen munkában néhány ciklusú terahertzes pulzusok (0.5 THz - 15 THz) alkalmazásával alapállapotú molekulák fotogerjesztésének szabályozási lehetőségeit vizsgáljuk számítógépes szimulációs módszerek segítségével. Meg fogjuk mutatni, hogy a lézer központi frekvenciájának alkalmas megválasztásával a molekulák vibrációs, rotációs, vagy rovibrációs gerjesztése révén a dinamikai viselkedés jelentősen befolyásolható és ezáltal az alkalmazott UV pumpa pulzussal történő fotogerjesztés hatékonysága szabályozható. Numerikus vizsgálati eredményeinket – melyet az időtől függő Schrödinger-egyenlet pontos megoldásával kapunk – a széles körben tanulmányozott nátrium-jodid (NaI) molekula [5,6] példáján mutatjuk be. A NaI molekula rovibrációs hullámfüggvényének analízisén keresztül szemléltetni fogjuk, hogy az alapállapotú rendszer fotogerjesztése széles pumpa energia tartományban módosíthatóvá válik megfelelően megválasztott, a pumpálást megelőző terahertzes kontroll pulzusok alkalmazásával.

2. Eredmények

Numerikus vizsgálatunk eredményeit a NaI példáján szemléltetjük kétállapot közelítésben. A lézer-molekula kölcsönhatás leírásához az $i\hbar \frac{d\psi}{dt} = H(t)\psi$ időtől függő Schrödinger-egyenletet oldjuk meg a széles körben alkalmazott és nagy pontosságú ún. MCTDH (multi configurational time-dependent Hartree) módszer segítségével [7]. $H(t)$ a lézerrel kölcsönható forgó-rezgő molekula teljes Hamilton-operátora, $\psi(R, \theta, t)$ pedig a megoldás hullámfüggvény mely a rendszerre vonatkozó információt tartalmazza. A terahertzes kontroll és UV pumpa pulzusokkal kölcsönható forgó-rezgő molekula teljes időtől függő Hamilton-operátora dipólközelítésben a következő alakban adható meg az alap- és első gerjesztett elektronállapotok terében [6]:

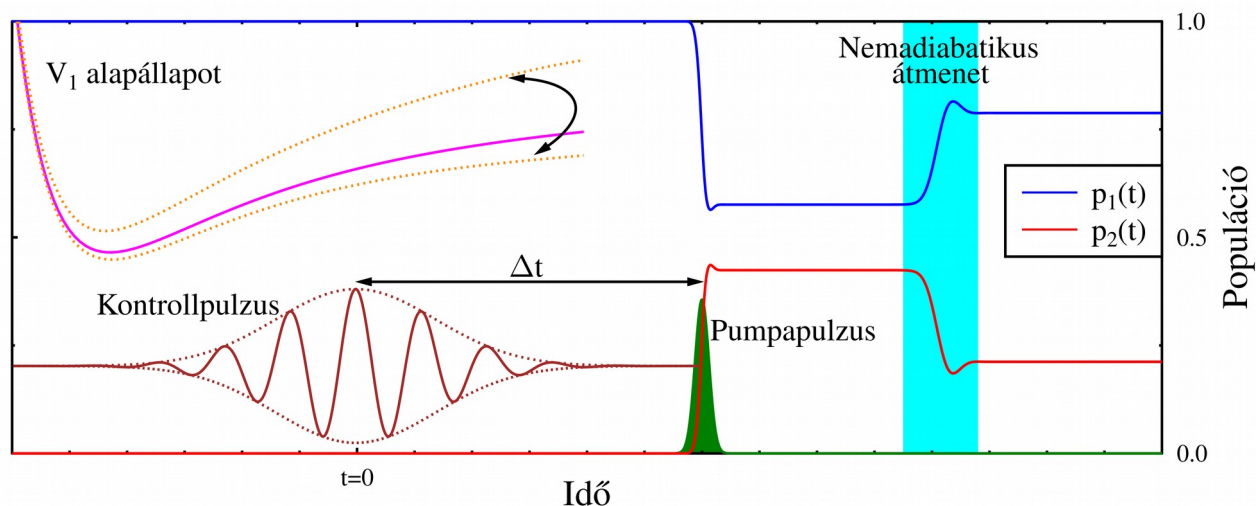
$$H(t) = \left[\frac{-1}{2M} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{J^2}{2MR^2} \right] \cdot \mathbf{1} + \begin{bmatrix} V_1 & K \\ -K & V_2 \end{bmatrix} - E(t) \cdot \cos\theta \cdot \begin{bmatrix} \mu_{11} & \mu_{12} \\ \mu_{21} & \mu_{22} \end{bmatrix} \quad (1)$$

ahol M a redukált tömeg, R a magtávolság, θ a molekulatengely és a lézerpolarizációk iránya közötti szög, J^2 az impulzusmomentum-négyzet operátor, $\mathbf{1}$ szimbolizálja a 2×2 -es egységmátrixot, továbbá a V_i potenciálok és a μ_{ij} dipólmomentumok ($i, j=1, 2$) alakja az 1. ábrán látható. Az (1)-ben megjelenő $K = \frac{1}{2M} [2f \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\partial}{\partial R} f]$ nemadiabatikus csatolási operátor az elektronállapotok csatolódását írja le. Az ebben szereplő $f = \langle 1 | \partial_R | 2 \rangle$ nemadiabatikus csatolási tag az 1. ábra a) panelén látható. Az (1)-ben szereplő utolsó, fény-anyag kölcsönhatási tagban a lineárisan poláros $E(t)$ elektromos tér a terahertzes kontroll pulzus és az UV pumpa pulzus összegeként áll elő, $E(t) = E_{THZ} \cdot e^{-t^2/2 \tau_{THZ}^2} \cdot \cos(\omega_{THZ} t) + E_{UV} \cdot e^{-(t-\Delta t)^2/2 \tau_{UV}^2} \cdot \cos(\omega_{UV}(t-\Delta t))$, melyek között Δt az időkésceltetés és a polarizációs irányuk megegyezik. Az itt alkalmazott pulzusok félértékszélessége ($fwhm = 2\tau \sqrt{\ln 2}$) tipikusan az $fwhm_{THZ} \sim 100 - 700$ fs és $fwhm_{UV} = 10$ fs tartományba esik. A kontroll pulzus intenzitása $I_{THZ} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$, míg a pumpa pulzusé $I_{UV} = 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ a dolgozat egészében. Fontos megjegyezni, hogy a rendszer kezdő állapota minden esetben a V_1 potenciál vibrációs és rotációs alapállapota: $v=0, J=0$.



1. ábra (a) A nátrium-jodid molekula alap- és első gerjesztett elektronállapotú potenciális energia görbéi. Az ion- és kovalens állapotok $R \sim 8$ Å magtávolságnál csatolódnak, amit az energia görbék közelsége valamint az f nemadiabatikus csatolási tag éles maximuma is tükröz (lila görbe). (b) Az elektronállapotok permanens- és átmeneti dipólmomentum görbéi. A dipólmomentumok iránya megegyezik a molekulatengely irányával.

A dolgozatban vizsgált dinamikai folyamat sematikusan a 2. ábrán látható. A pumpa pulzust megelőző néhány ciklusú THz-es pulzus rovibrációs gerjeszti az alapállapotú molekulát miközben a $V_1(R)$ potenciál görbe dinamikusan oszcillál a Stark-effektus következtében a lézerdipól kölcsönhatási tag időlefolysa szerint: $V_1(R, t) = V_1(R) - \mu_{11}(R) E_{THZ} \cdot e^{-t^2/2 \tau_{THZ}^2} \cdot \cos(\omega_{THZ} t)$ (lásd a 2. ábra bal oldalán). Ezt követően Δt időkésceltetéssel bekapcsoljuk az optikai tartományba eső rövid pumpa pulzust, melynek központi frekvenciáját úgy változtatjuk, hogy az rezonánsan csatolja a V_1 és V_2 potenciállal jellemzett alap- és első gerjesztett elektronállapotokat (kék terület az 1. ábrán) a Franck-Condon (FC) tartományban. A fotogerjesztés hatására – a kontroll pulzus paramétereitől függően – a gerjesztett állapot különböző mértékben populálódik (p_2). Ezt követően a gerjesztett molekula magtávolsága növekedni kezd (V_2 gradiensének megfelelően) majd kb. 200 fs elteltével eléri a nemadiabatikus csatolási tartományt ($R \sim 8$ Å) ahol sugárzásmentesen legerjesztődik a rendszer, visszajut az alapállapotba és ott disszociál (kék terület a 2. ábrán). Így módon közvetetten nem csak a fotogerjesztés, hanem az azt követő disszociáció is szabályozható.

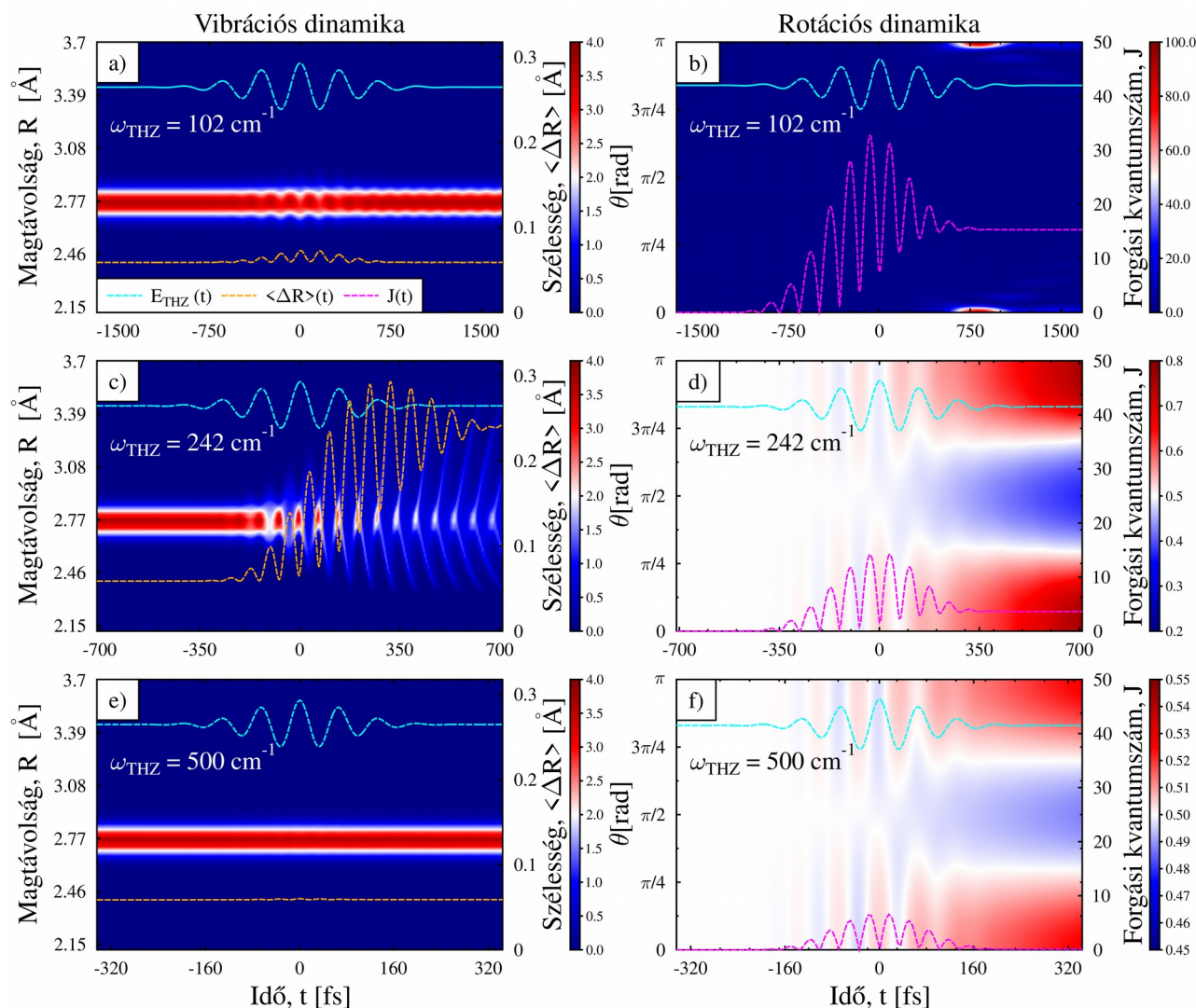


2.ábra A dolgozatban alkalmazott lézer kontroll séma. Az alapállapotú NaI molekulát THz tartományba eső néhány ciklusú pulzussal megvilágítjuk, ami az alapállapotú potenciál Stark-eltolódása révén a molekula vibrációs gerjesztését eredményezi. Az időkéscsökkentéssel bekapcsolt UV pumpa pulzus az alkalmazott kontroll paramétereitől függően más és más állapotban találja a rendszert, ezáltal pedig eltérő mértékben populálja a gerjesztett állapotot. A gerjesztett molekula kb. 200 fs elteltével eléri a nemadiabatikus csatolási tartományt ahol legerjesztődve visszajut az alapállapotba és ott disszociál Na és I atomokra.

A NaI molekula $\psi_1(R, \theta, t)$ alapállapotú hullámfüggvényének időfejlődését jelentős mértékben befolyásolja az alkalmazott kontroll pulzus központi frekvenciája. A frekvenciát változtatva a 0.5 THz – 15 THz tartományban ($17 \text{ cm}^{-1} - 500 \text{ cm}^{-1}$) azt tapasztaljuk, hogy kisebb energiákon a molekulának a lézerpolarizáció irányába történő rendeződése zajlik, míg az energia növelésével egyre inkább a vibrációs gerjesztés válik dominánssá (részletekért lásd a [8]-as hivatkozást). Pumpa nélkül, csupán a kontroll pulzust bekapcsolva és változtatva annak $\hbar \omega_{\text{THZ}}$ energiáját azt találjuk, hogy az alapállapotú molekula magtávolságának várható értéke ($\langle R \rangle$) valamint a maghullámcsomag szélességének várható értéke ($\langle \Delta R \rangle$) éles maximumot mutat a $\hbar \omega_{\text{THZ}} = 121 \text{ cm}^{-1}$ és a $\hbar \omega_{\text{THZ}} = 242 \text{ cm}^{-1}$ értékeknél [8]. Ezen energia értékek megfelelnek az alapállapotú NaI molekula $\nu=0$ és $\nu=1$ vibrációs állapotai közötti két- és egyfotonos átmeneteknek.

Most vizsgáljuk meg konkrétan a $\psi_1(R, \theta, t)$ alapállapotú maghullámfüggvény időfejlődését néhány karakterisztikus kontroll energia esetén. A kapott eredményeket a 3.ábra mutatja a $\hbar \omega_{\text{THZ}} = 102 \text{ cm}^{-1}$ $\hbar \omega_{\text{THZ}} = 242 \text{ cm}^{-1}$ és $\hbar \omega_{\text{THZ}} = 500 \text{ cm}^{-1}$ kontroll energiákra. A baloldali panelek a vibrációs, míg a jobboldali panelek a rotációs dinamikát szemléltetik. A kontúrok színekódja a panelek jobb szélén azt mutatja, hogy milyen nagy a vibrációs illetve rotációs hullámfüggvényből számolt megtalálási valószínűség sűrűség értéke az R illetve θ koordináták mentén az idő függvényében. Mindegyik panelen feltüntettük a terahertzes kontroll pulzus alakját (kék görbe). A vibrációs esetben a maghullámfüggvény szélességének várható értékét narancs vonal jelöli (jobboldali y tengely), míg a rotációs esetben a forgási kvantumszám legvalószínűbb értékének időfejlődését lila görbe mutatja (jobboldali y tengely). A 3.ábra(a) tanúsága szerint 102 cm^{-1} energián csekély mértékű vibrációs gerjesztés történik: a maghullámfüggvény pozíciója és szélessége kis mértékben megváltozik a pulzus ideje alatt, azonban a pulzus után ezen mennyiségek visszaállnak eredeti értékükre. Ezzel szemben jelentős rotációs dinamika zajlik ezen az energián (3.ábra(b)): a kezdetben izotróp

eloszlású rendszer ($J=0$) a pulzus hatására erősen anizotróppá válik, a lineáris molekula rendeződik a kontroll pulzus polarizációjának irányába (lásd az éles piros csúcsokat $\theta=0$ és $\theta=\pi$ körül). A forgási gerjesztettséget jól tükrözi a J kvantumszám legvalószínűbb értékének növekedése (lila görbe), valamint annak pulzus utáni megmaradó értéke ($J=16$).



3.ábra A NaI molekula vibrációs (baloldali panelek) és rotációs (jobboldali panelek) hullámcsomag dinamikája a V_1 alapállapotú potenciálon. Az alkalmazott kontroll pulzus központi frekvenciájának megfelelő megválasztásával a magdinamika különböző tartományait tanulmányozhatjuk. Alacsony energiákon a molekula irányítását ($\hbar \omega_{\text{THZ}}=102 \text{ cm}^{-1}$), míg közepes energiákon annak vibrációs gerjesztését indukálhatjuk ($\hbar \omega_{\text{THZ}}=242 \text{ cm}^{-1}$). Az energia további növelésével a vibrációs és rotációs gerjesztés egyaránt elhanyagolható ($\hbar \omega_{\text{THZ}}=500 \text{ cm}^{-1}$). A molekula kezdeti állapota minden esetben a vibrációs és rotációs alapállapot ($v=0, J=0$).

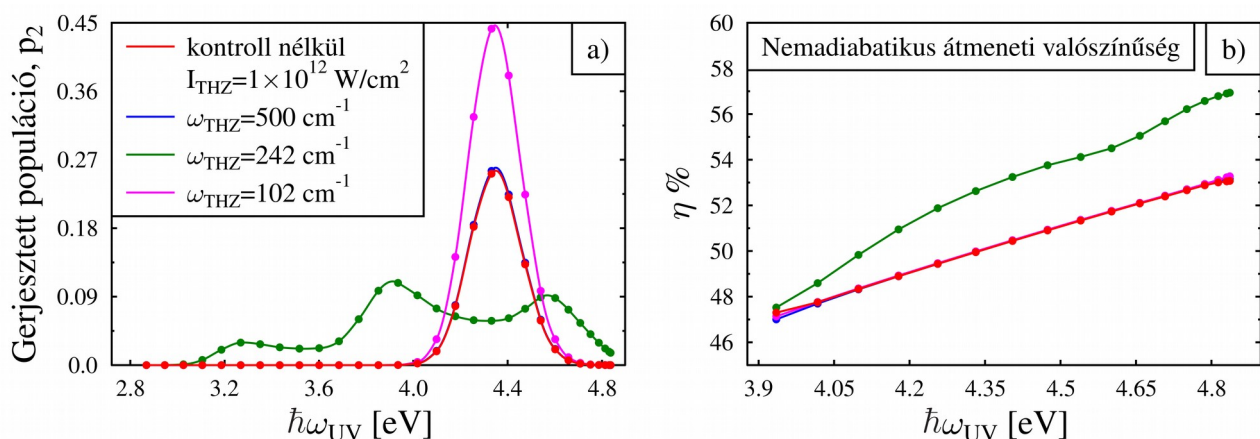
$\hbar \omega_{\text{THZ}}=242 \text{ cm}^{-1}$ energián – mely megfelel a molekula $v=0 \rightarrow v=1$ vibrációs átmenetének – a kontroll pulzus jelentős rezgési gerjesztést indukál (3.ábra(c)). Amint a pulzus eléri a maximumát, a a vibrációs hullámcsomag szélessége periodikusan oszcillálni kezd az $R_0=2.77 \text{ Å}$ egyensúlyi magtávolság körül. A hullámcsomag szélességének várható értéke ($\langle \Delta R \rangle$) a pulzus leszálló ágában mintegy háromszorosára növekszik a kiinduló értéknek (narancs görbe a 3.ábra(c)-n). Mindeközben nem elhanyagolható a rendszer forgása (3.ábra(d)): a kezdeti izotróp eloszlás megszűnik és most is

$\theta=0$ és $\theta=\pi$ köré rendeződnek a molekulák, de korántsem olyan nagy mértékben mint kisebb energián; továbbá a pulzus utáni J érték is jelentősen kisebb ($J=3$) mint korábban.

Tovább növelve a kontroll pulzus energiáját ($\hbar \omega_{THZ}=500 \text{ cm}^{-1}$) sem vibrációs, sem jelentékeny rotációs gerjesztés nem történik (3.ábra(e)-(f)): az $\langle R \rangle$ és a $\langle \Delta R \rangle$ értéke nem változik a pulzus ideje alatt, továbbá az izotróp eloszlás jó közelítéssel megmarad és $J=0$ értéket kapunk a pulzus után. Ilyen nagy energiák - nagy frekvencia, kis periódusidő - esetén a potenciál dinamikus Stark-eltolódása olyan gyorsan történik, hogy a molekula ezt már nem tudja követni és így a kontroll pulzus gerjesztő hatása nem érvényesül.

3. Összegzés és konklúziók

A 3.ábrán bemutatott rotációs-vibrációs hullámcsomag időfejlődésének analízise alapján láthattuk, hogy mely kontroll energiák eredményeznek elsősorban forgási, melyek pedig főként rezgési gerjesztést a NaI molekula esetében. Ezek alapján azt várjuk, hogy a különböző energia tartományokban a molekula fotogerjesztésének hatékonysága meg fog változni lévén, hogy a hullámcsomag eloszlása is megváltozott az $\{R, \theta\}$ térben a kontroll pulzus hatására.



4.ábra (a) Alapállapotú NaI molekula gerjesztési profilja kontroll pulzus nélkül (piros görbe) és különböző központi frekvenciájú kontroll pulzusok esetén: $\hbar \omega_{THZ}=242 \text{ cm}^{-1}$ esetén az alapállapotú hullámcsomag szétterül, ezáltal széles energia tartományban gerjeszthetővé válik a rendszer, míg $\hbar \omega_{THZ}=102 \text{ cm}^{-1}$ esetén a molekulának a lézerpolarizáció irányába állása révén jelentősen megnövelhető a pumpálás hatékonysága. (b) A pumpálást követő nemadiabatikus legerjesztődés valószínűsége. Növekvő pumpa energiával illetve vibrációs gerjesztettség esetén (zöld görbe) megnövekszik a nemadiabatikus átmenet hatékonysága.

Ennek ellenőrzése érdekében számoljuk ki a molekula gerjesztési profilját a kontroll pulzus alkalmazása után, azaz pásztázzunk az UV pumpa pulzus energiájával a $V_1 \leftrightarrow V_2$ rezonancia környezetében (kék terület az 1.ábrán) és számoljuk ki a gerjesztett állapot p_2 betöltöttségét a pumpálás után. A kapott eredmények a 4.ábra a) panelén láthatók különböző kontroll energiák esetén. A kontroll nélküli esetet a piros görbe mutatja, ami alapján látható, hogy az alap- és első gerjesztett elektronállapotok között a legvalószínűbb átmenetet $\hbar \omega_{UV}=4.35 \text{ eV}$ pumpa energia esetén kapjuk. 102 cm^{-1} -es kontroll energián a gerjesztés valószínűsége jelentős mértékben megnövekszik (lila görbe), azonban a gerjesztési profil alakja változatlan marad (továbbra is 4.35

eV pumpa energián maximális a gerjesztés hatékonysága). Ennek oka, hogy a tér irányába történő rendeződés révén a molekula által a pumpálás során érzékelt effektív térerősség nagy mértékben megnövekedett.

Ezzel ellentétben 242 cm^{-1} -es kontroll energián a gerjesztési profil alakja számottevően megváltozik és a gerjesztés hatékonysága széles pumpa energia tartományban szabályozhatóvá válik (zöld görbe). Mindez azzal magyarázható, hogy a V_1 Stark-eltolódása révén a maghullámfüggvény kiszélesedik, ezáltal pedig kis és nagy magtávolságoknál egyaránt gerjeszthetővé válik a molekula. A zöld görbe alakja így módon közvetetten tükrözi az alapállapot hullámcsomag alakját a pumpálás pillanatában. Tovább növelve a kontroll pulzus energiáját (500 cm^{-1}) nem történik jelentős változás a kiinduló hullámcsomagban, így a gerjesztési profil sem módosul jelentős mértékben (kék görbe). Végezetül megjegyezzük, hogy a fotogerjesztést követően kb. 200 fs elteltével a molekula nemadiabatikus legerjesztődés révén visszakerül alapállapotba és ott disszociál Na és I atomokra. A legerjesztődés valószínűsége annál nagyobb, minél több energiát vittünk a rendszerbe, azaz a pumpa energia növelésével növekszik (4.ábra(b)) továbbá vibrációs gerjesztettség esetén is számottevően megemelkedik.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosítójú, EU társfinanszírozású projekt támogatta.

Irodalom

- [1] B.J. Sussman, D. Townsend, M.Y. Ivanov, A. Stolow, *Science* **314**, 278 (2006)
<https://doi.org/10.1126/science.1132289>
- [2] A. Tóth, A. Csehi, G.J. Halász, Á. Vibók, *Phys. Rev. Res.* **2**, 013338 (2020)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.013338>
- [3] B. Mignolet, B. F. E. Curchod, F. Remacle, T. J. Martínez, *J. Phys. Chem. Lett.* **10**, 742 (2019)
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.8b03814>
- [4] S. Scheit, Y. Arasaki, K. Takatsuka, *J. Phys. Chem. A* **116**, 2644 (2012)
<https://doi.org/10.1021/jp2071919>
- [5] T.S. Rose, M.J. Rosker, A.H. Zewail, *J. Chem. Phys.* **91**, 7415 (1989)
<https://doi.org/10.1063/1.457266>
- [6] A. Csehi, G.J. Halász, L.S. Cederbaum, Á. Vibók, *J. Phys. Chem. Lett.* **8**, 1624 (2017)
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.7b00413>
- [7] H.-D. Meyer, U. Manthe, L.S. Cederbaum, *Chem. Phys. Lett.* **165**, 73 (1990)
[https://doi.org/10.1016/0009-2614\(90\)87014-I](https://doi.org/10.1016/0009-2614(90)87014-I)
- [8] Biró L., MSc Diplomamunka, Debreceni Egyetem (2020)

MAGNÉZIUMMAL ADALÉKOLT SZTÖCHIOMETRIKUS LÍTIUM-NIOBÁT HŐMÉRÉSKLETFÜGGŐ DIELEKTROMOS PARAMÉTEREI A TERAHERTZES TARTOMÁNYON

Buzády Andrea¹, Gálos Réka¹, Makkai Géza¹, Xiaojun Wu², Tóth György¹, Kovács László³, Almási Gábor¹, Hebling János^{1,4} és Pálfalvi László¹

¹Fizika Intézet, Pécsi Tudományegyetem, 7624 Pécs, Ifjúság útja 6., Magyarország

²School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing, 100191, China

³Wigner Fizikai Kutatóközpont, 1121 Budapest, Komoly Thege Miklós út 29-33., Magyarország

⁴MTA-PTE, Nagyintenzitású Kutatócsoport, 7624 Pécs, Ifjúság útja 6., Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.5>

1. Bevezetés

A nemlineáris optikai kristályokban létrehozott optikai egyenirányítás az egyik leggyakrabban alkalmazott módszer a terahertzes impulzusok előállítására. Sok alkalmazásnál extrém nagy energiájú és elektromos térerősségű terahertzes jelre van szükség. Az optikai tartományból a terahertzes tartományba való konverzió hatásfoka jelentősen függ az úgynevezett sebességillesztés feltételének teljesülésétől. Ez azt jelenti, hogy az optikai impulzus csoportsebessége és a keltett terahertzes impulzus fázissebessége meg kell egyezzen a kristályban. Ezt a feltételt a döntött impulzusfrontú gerjesztéssel lehet kielégíteni, még akár olyan kristályokban is, amelyekben nem egyezik meg a terahertzes és az optikai törésmutató [1]. A döntött impulzusfrontú gerjesztés esetén a sebességillesztés feltétele: $v_{opt}^{cs} \cos \gamma = v_{THz}^f$, eszerint az optikai pumpáló impulzus csoportsebességének a THz-es impulzus terjedési irányára vett vetülete kell megegyezzen a THz-es impulzus fázissebességével. Az impulzusfront γ szögű megdöntése szögdiszperzióval rendelkező optikai elemek alkalmazásával érhető el hangolhatóan.

A THz keltésben gyakran használt kristály a lítium-niobát (LiNbO_3 , LN). A döntött impulzusfrontú elrendezés paramétereinek tervezésénél ismerni kell a nemlineáris kristály terahertzes tartományú abszorpciós együtthatójának és a törésmutatójának frekvenciafüggvényét. Korábbi tanulmányokból ismert, hogy a kristály sztöchiometriája és magnéziummal való adalékolása befolyásolja a dielektromos paramétereket [2,3]. Ezen tulajdonságok optimalizálásán túlmenően a hőmérséklet csökkentésével is kedvezőbbé lehet tenni a terahertzkeltés hatásfokát, ahogy azt 6 mol% Mg-adalékolású kongruens lítium-niobát (cLN:6.0%Mg) esetén már vizsgálták [4]. Munkánkban a 0,7 mol% Mg-adalékolású sztöchiometrikus lítium-niobát hőmérsékletfüggő dielektromos paramétereinek terahertzes tartományú meghatározását tűztük ki célul, mert a szobahőmérsékletű mérések alapján a terahertzes sugárzás generálásához ez még kedvezőbbnek tűnik, mint a kongruens kristály.

Az eredmények felhasználásával megadtunk egy kompakt formulát is a törésmutató és az abszorpciós együttható frekvenciafüggvényének a rekonstruálásához. Bár a függvény nem valós fizikai kölcsönhatásokat leíró modellből [5] származik, jól használható nagy energiájú terahertzes források tervezésénél a hőmérsékletfüggő sebességillesztési szög meghatározásához [6,7].

2. Mérés és adatfeldolgozás

A 0,7%-ban magnéziummal adalékolt 600 μm vastagságú sztöchiometrikus LN kristály (0,7%Mg:sLN) vizsgálatához szükséges időtérbeli jelek mérését Tong Lin és Xiaojun Wu (School

of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing, 100191, China) végezték egy THz-TDS berendezéssel 4-460 K hőmérsékleten ordinárius és extraordinárius polarizációs irányban is.

A szélessávú lineárisan polarizált THz-es impulzus keltése gallium-arsenid (GaAs) fotovezető antennával történt. Ehhez 70 fs-os lézerimpulzusokat alkalmaztak, melyek forrása egy 80 MHz ismétlési frekvenciájú titán-zafír lézer volt. A THz-es jelet parabolikus tükrök fókuszálták a mintára, majd a detektorra. A detektálás elektrooptikai mintavételezéssel történt.

A minta, az emitter és a detektor is egy vákuumkamrában volt elhelyezve, amelyben körülbelül 10^{-5} mbar nyomás volt biztosított a hűtés és a mérés során. A kriogenikus hőmérsékletre való hűtéshez folyékony héliumot alkalmaztak. A mintát a THz-es nyaláb fókuszsíkjába helyezve megmérték a rajta átmenő jelet ordinárius polarizációs irányban, majd 90° -al elforgatva extraordinárius polarizációs irányban is. Mindkét irányban több különböző – ordinárius irányban: 4 K, 20 K, 40 K, 60 K, 100 K, 140 K, 180 K, 220 K, 260 K, 300 K, 340 K, 380 K, 420 K, 460 K; extraordinárius irányban: 4 K, 20 K, 40 K, 60 K, 80 K, 100 K, 120 K, 140 K, 160 K, 180 K, 220 K, 240 K, 260 K, 280 K, 300 K, 320 K, 340 K, 360 K, 380 K, 420 K, 460 K – hőmérsékleten történtek mérések. Referenciajelet (üres téren átmenő jel) a minta ordinárius irányban történő mérése közben több hőmérsékleten (100 K, 180 K, 300 K, 420 K) is mértek. Ezen jelek között nem tapasztalható jelentős változás, így a továbbiakban csak 300 K hőmérsékleten készült referenciajel.

A minta anyagi paramétereinek meghatározásához a mintán átmenő és üres téren átmenő (referencia) THz-es jel elektromos térerősségének időbeli lefutására van szükség. Az időtérbeli jel Fourier-transzformáltja adja a komplex spektrumot, azaz a térerősség amplitúdóját és fázisát. A mintára és a referenciára jellemző spektrumok ($E_{sample}(\nu)$; $E_{ref}(\nu)$) összehasonlításával a következőképpen határozható meg az anyagra jellemző frekvenciafüggő abszorpció és törésmutató. A Fourier-transzformáltakból számított átviteli függvény:

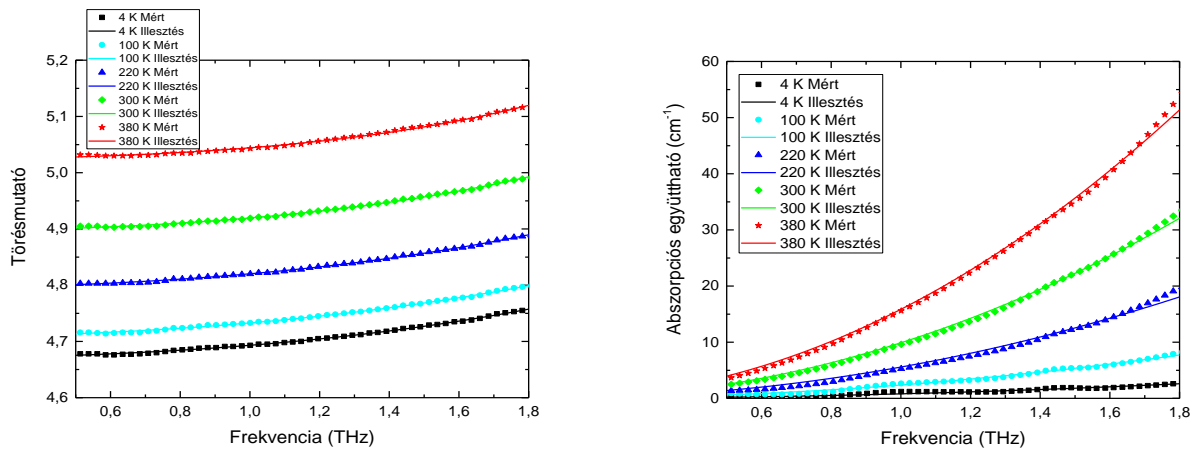
$$H(\nu) = \frac{E_{sample}(\nu)}{E_{ref}(\nu)}$$

Ezt felhasználva adódik a d vastagságú mintára az $n(\nu)$ törésmutató, annak ismeretében pedig az $\alpha(\nu)$ abszorpció együttható:

$$n(\nu) = \arg(H(\nu)) \cdot \frac{c}{2\pi\nu d} + 1 \quad \alpha(\nu) = \frac{4\pi\nu\kappa(\nu)}{c} = \frac{2}{d} \ln \left(\frac{1}{|H(\nu)|} \frac{4n(\nu)}{(n(\nu) + 1)^2} \right)$$

3. Eredmények

Az 1. ábrán a terahertzkeltés szempontjából fontosabb extraordinárius polarizációjú törésmutató és abszorpció együttható frekvenciafüggvénye látható néhány kiválasztott hőmérsékleten. Az időtérbeli mérésekből meghatározható adatokat polinom függvénnyel illesztettük.



1. ábra

0,7%Mg:sLN extraordinárius törésmutató és abszorpciós együttható frekvenciafüggése és polinomos illesztése

Tapasztalataink alapján az abszorpciós együttható frekvenciafüggését másodfokú függvénnyel lehet jól leírni:

$$\alpha(\nu, T) = B(T)\nu^2$$

ahol a $B(T)$ illesztési paraméter a hőmérséklet másodfokú függvénye:

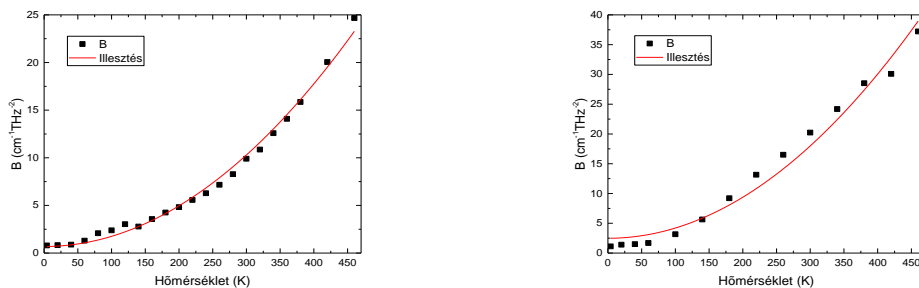
$$B(T) = a_0 + b_0 T^2$$

Így az $\alpha(\nu, T) = (a_0 + b_0 T^2)\nu^2$ összefüggéssel az adott polarizációs irányban bármely hőmérsékleten széles frekvenciatartományon megadható az abszorpciós együttható mindössze két konstans segítségével, melyek az 1. táblázatban és a 2. ábrán láthatóak.

	a_0 (cm ⁻¹ THz ⁻²)	b_0 (10 ⁻⁴ cm ⁻¹ K ⁻² THz ⁻²)
Extraordinárius	0,69	1,07
Ordinárius	2,48	1,72

1. táblázat

Az abszorpciós együttható frekvencia- és hőmérsékletfüggését egyszerre jellemző konstansok extraordinárius és ordinárius polarizációs irányban

2. ábra 0,7%Mg:sLN $B(T)$ függvénye extraordinárius és ordinárius polarizációirányra

A frekvenciafüggő törésmutató adatok jól közelíthetők bármely hőmérsékleten a következő negyedrendű polinommal:

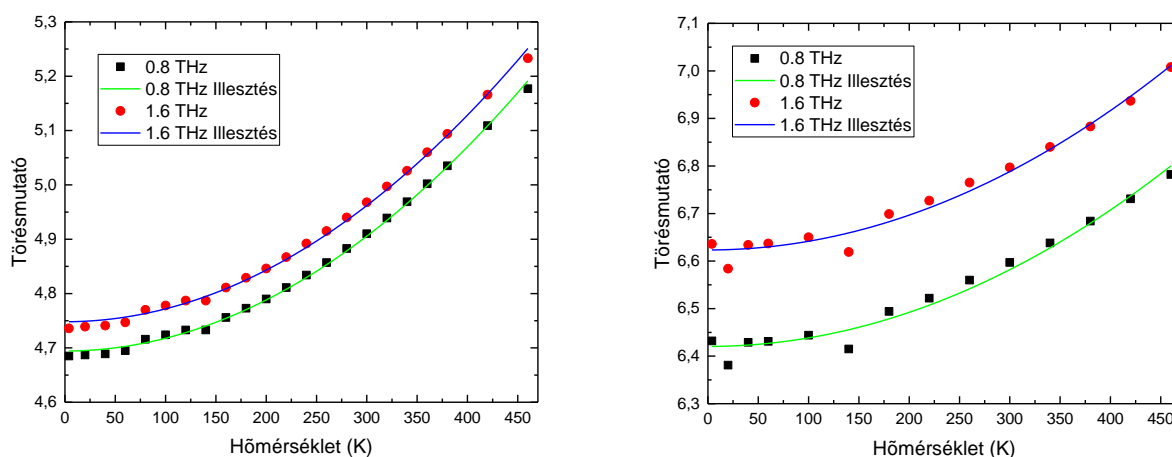
$$n(\nu) = A + B\nu^2 + C\nu^4$$

A törésmutató frekvencia- és hőmérsékletfüggése – az abszorpciós együtthatóéval ellentétben – nem jellemezhető az összes frekvenciára egyszerre érvényes egyszerű formulával. Két kiválasztott (0,8 THz és 1,6 THz) frekvencián azonban a hőmérsékletfüggés megadható egy másodfokú függvénnyel. A 2. táblázatban és a 2 ábrán az $n(T) = A + BT^2$ polinommal történt illesztés eredményei láthatóak.

	0,8 THz		1,6 THz	
	A	B (10^{-6} K^{-2})	A	B (10^{-6} K^{-2})
Extraordinárius	4,69	2,35	4,75	2,38
Ordinárius	6,42	1,79	6,62	1,83

2. táblázat

A hőmérséklettől függő törésmutató illesztési paraméterei mindkét polarizációs irányban két kiválasztott frekvencián



3. ábra

0,7%Mg:sLN extraordinárius és ordinárius törésmutató hőmérsékletfüggése

A döntött impulzusfrontú THz-keltés megvalósításához szükséges nemcsak az impulzusfront dőlésszögének, hanem a diffrakciós szög és a rácsra való beesési szög ismerete is.

Az optimális elrendezés tervezéséhez az impulzusfont dőlésszögét (fázisillesztési szög) (4. ábra) az $v_{opt}^{cs} \cos \gamma = v_{THz}^f$ egyenlet alapján határoztuk meg, amelyhez a THz-es fázissebességet a 0,8 és 1,6 THz frekvencián mért törésmutató-adatokból számoltuk az összes hőmérsékleten. Az optikai impulzus csoportsebességének meghatározásához Gayer korábbi eredményeit [8] használtuk. Ezen paraméterek ismeretében a diffrakciós szög és az optikai rácsra való beesés szöge (5. ábra) 0,8 és 1,6 THz frekvencián több hőmérsékleten a következő összefüggésekkel határozhatók meg.

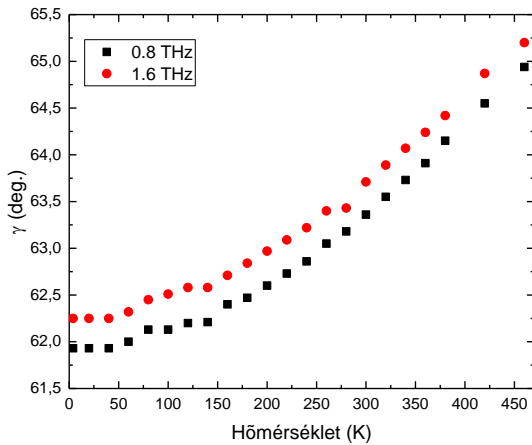
$$\sin \theta_d = \frac{\lambda_0}{n(\lambda_0)n_g(\lambda_0)p} a$$

$$\sin \theta_i = \frac{\lambda_0}{p} - \sin \theta_d$$

ahol θ_d a diffrakciós szög, θ_i a beesési szög, p a rácskarcolatok távolsága, λ_0 a pumpálási hullámhossz, $n(\lambda_0)$ a fázistörésmutató a pumpálási hullámhosszon, $n_g(\lambda_0)$ a csoporttörésmutató a pumpálási hullámhosszon, amely a fázistörésmutató ismeretében $n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}$ módon számolható, az a paraméter pedig a következő [6,7]:

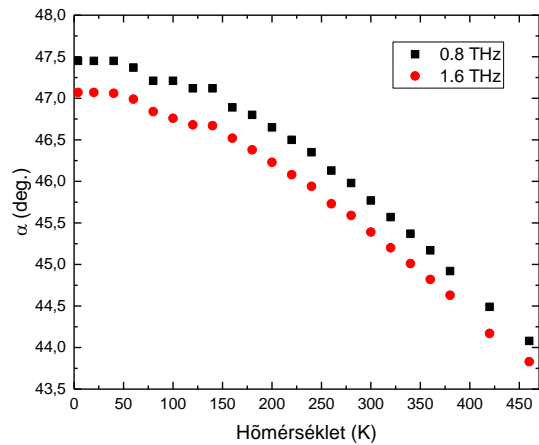
$$a = \frac{n^2(\lambda_0)n_g(\lambda_0)p}{2\lambda_0} \sqrt{\frac{\lambda_0^2}{n_g^2(\lambda_0)p^2 \tan^4 \gamma} + \frac{4}{n^2(\lambda_0)}} - \frac{n^2(\lambda_0)}{2 \tan^2 \gamma}$$

A számolás során 1030 nm pumpálási hullámhosszat és a rácskarcolatok sűrűségének 1500 karcolat/mm-t feltételeztünk [8].



4. ábra

0,7%Mg:sLN kristályban az impulzusfront
dőlésszögének hőmérsékletfüggése



5. ábra

0,7%Mg:sLN kristályban a rácsra való
beesési szög hőmérsékletfüggése

4. Összefoglalás

0,7%-ban magnéziummal adalékolt sLN kristály dielektromos jellemzőinek frekvencia- és hőmérsékletfüggését 0,5-1,8 THz frekvenciatartományon ordinárius és extraordinárius polarizációs irányban vizsgálva megállapítható, hogy THz-es jel keltése szempontjából előnyösebb lehet cLN kristály helyett sLN kristályt alkalmazni, mivel a törésmutató és az abszorpciós együttható értékei is kisebbek mindkét polarizációs irányban. Az abszorpciós együttható nemcsak a kristály sztöchiometriájával és magnéziummal való adalékolással csökkenthető, hanem kriogenikus hőmérsékletre való hűtéssel is. A hőmérséklet csökkenésével a minta törésmutatója és abszorpciós együtthatója is csökken a teljes megbízható frekvenciatartományon. 100 K hőmérséklet alatt azonban nem tapasztalható jelentős változás a hőmérséklet csökkenésével sem a törésmutatóban, sem az abszorpciós együtthatóban egyik polarizációs irány esetén sem. Tehát a további alkalmazásokhoz nem szükséges 100 K hőmérséklet alá hűteni a mintát.

Továbbá, tapasztalataink alapján az abszorpciós együttható frekvencia- és hőmérsékletfüggése egyszerre leírható egy kompakt formulával, amely matematikailag is alátámasztható. Így adott minta adott polarizációs irányában bármely hőmérsékleten széles frekvenciatartományon megadható az abszorpciós együttható két illesztési konstans segítségével.

A törésmutató frekvenciafüggése negyedfokú polinommal közelíthető, míg a hőmérsékletfüggése – adott frekvencián kiszemelve értékeket – másodfokú polinommal írható le.

A fázisillesztési szög és a rácsra való beesési szög hőmérsékletfüggése azt mutatja, hogy döntött impulzusfrontú THz-keltés elrendezésének optimalizálásakor figyelembe kell venni a hőmérséklet hatását is.

Köszönetnyilvánítás

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosító számú, Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben című projekt támogatta.

Irodalom

- [1] J. Hebling, J. G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” *Opt. Express* **10**, 1161–1166 (2002)
<https://doi.org/10.1364/OE.10.001161>
- [2] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, A. Péter, and K. Polgár, “Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ in the THz range,” *J. Appl. Phys.* **97**, 123505 (2005)
<https://doi.org/10.1063/1.1929859>
- [3] M. Unferdorben, Z. Szaller, I. Hajdara, J. Hebling, and L. Pálfalvi, “Measurement of Refractive Index and Absorption Coefficient of Congruent and Stoichiometric Lithium Niobate in the Terahertz Range,” *J. Inf. Millim. TE* **36**, 1203–1209 (2015)
<https://doi.org/10.1007/s10762-015-0165-5>
- [4] X. Wu, C. Zhou, W. R. Huang, F. Ahr, and F. X. Kärtner, “Temperature dependent refractive index and absorption coefficient of congruent lithium niobate crystals in the terahertz range,” *Opt. Express* **23**, 29729–29737 (2015)
<https://doi.org/10.1364/OE.23.029729>
- [5] M. Schall, H. Helmand, and S. R. Keiding, “Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy,” *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **20**, 595–604 (1999)
<https://doi.org/10.1023/A:1022636421426>
- [6] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification,” *Opt. Express* **18**, 12311–12327 (2010)
<https://doi.org/10.1364/OE.18.012311>
- [7] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification: erratum,” *Opt. Express* **19**, 22950 (2011)
<https://doi.org/10.1364/OE.19.022950>

- [8] O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie, „Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃,” *Appl. Phys. B* **91**, 343–348, (2008)
<https://doi.org/10.1007/s00340-008-2998-2>

FEMTOSZEKUNDUMOS PUMPA-PRÓBA ELLIPSZOMETRIA

Csontos János^{1,2}, Pápa Zsuzsanna^{1,2}, Nagyillés Bálint¹, Tóth Zsolt³, Budai Judit^{1,2}

¹SZTE Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, 6720 Szeged, Dóm tér 9., Magyarország

²ELI-HU Non-profit Kft, 6728 Szeged, Wolfgang Sandner utca 3., Magyarország

³SZTE Kísérleti Fizika Tanszék, 6720 Szeged, Dóm tér 9., Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.6>

1. Bevezetés

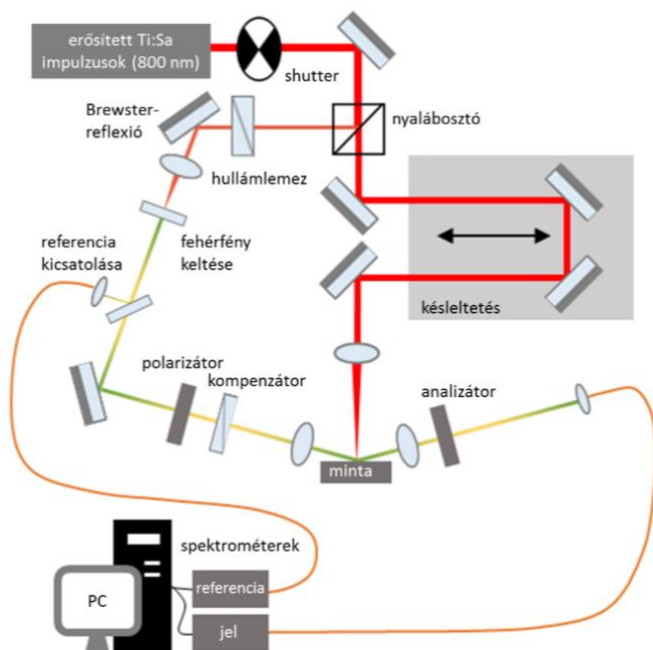
Különböző anyagok ultrarövid lézerimpulzusokkal történő besugárzása ultragyors időskálán bekövetkező változásokat eredményez a vizsgált anyag töltésrendszerében, illetve hőmérsékletében. Ezek valós idejű megfigyelése intenzíven kutatott terület, amelyhez általában az úgynevezett pumpa-próba módszereket alkalmazzák. Pumpa-próba mérés esetén a mintában egy pumpa impulzus előidéz valamilyen változást, amelyet az utána, adott időközessel érkező próba impulzus térképez fel. A próba impulzus beérkezési idejét változtatva a pumpa impulzus által előidézett változás teljes időbeli lefutásáról képet kaphatunk. Leggyakrabban a vizsgált minta abszorpció, illetve reflexió tulajdonságainak változásaiból következtetnek a lejátszódó folyamatokra, ezek azonban általában csak a vizsgált anyag optikai tulajdonságaiban bekövetkező változásokat adják meg, míg a dielektromos függvény tényleges értékéről nem tudnak információt szolgáltatni. Az elmúlt évekből csak elvétve találunk olyan eredményeket, ahol a spektroszkópiai ellipszometriát – amellyel nagy pontossággal lehet meghatározni különböző anyagok komplex dielektromos függvényét - ötvözték a pumpa-próba módszerrel [1-4].

Ebben a cikkben ismertetjük az általunk épített titán-zafír lézerre alapozott pumpa-próba ellipszométer működését és alkalmazhatóságát germánium szeletek vizsgálatával. Bemutatjuk a germánium optikai válaszána rövidimpulzusú gerjesztés hatására bekövetkező változásait 500 fs időfelbontással, és a germánium sávszerkezetét figyelembe véve magyarázatot adunk a megfigyelt tendenciákra.

2. Kísérleti elrendezés

A kísérlet során egy titán-zafír alapú erősítő 0,6 mJ energiájú, 800 nm-es központi hullámhosszú, 30 fs-os lézerimpulzusait használtuk. A kísérleti elrendezés az 1. ábrán látható, melynek első eleme egy mechanikus zár (shutter), ami az impulzusok kivágásáért volt felelős. A lézernyalábot ezt követően két részre osztottuk egy nyalábosztó segítségével. A nyaláb kisebbik hányada a próba karba haladt tovább, a fő részét pedig a kísérleti elrendezés pumpa karjába továbbítottuk. A próba karban egy félhullámlemez és egy Brewster-szögben elhelyezett üveglap segítségével csökkentettük a nyaláb intenzitását. Ezzel az elrendezéssel finoman lehetett hangolni a próba karba tovább haladó impulzusok energiáját, amely az impulzusok spektrális kiszélesítése, az úgynevezett fehérfénykeltés során volt fontos. A nyalábggyengítést követően egy 20 cm-es fókusztávolságú lencse segítségével, 2 mm vastag ömlesztett kvarcra fókuszáltuk a nyalábot. A kvarcban önfázismoduláció lépett fel, amely fehérfényt azaz spektrális kiszélesedést formájában jelentkezett a kvarclap után. A spektrálisan kiszélesedett nyaláb spektruma nagyjából 450 nm-től egészen 1100 nm-ig terjedt. Mivel a keltő impulzusok intenzitása jóval nagyobb, mint a fehérfény intenzitása, így a kísérlet során az elnyomja a hasznos mérőjelet. Emiatt a nyaláb kollimálását követően dikroikus szűrő segítségével kiszűrtük a keltő jelet, így a hasznos jel, tehát a próbajel spektrálisan 450 nm-től 720 nm-ig terjedt. A mérések során folyamatosan monitoroztuk a próba jel spektrumát egy, a nyaláb útjába helyezett üveglap elülső

felületéről reflektálódott nyaláb segítségével. Ennek a jelnek a spektrumát egy OceanOptics QEPro spektrométer segítségével rögzítettük, és a mérések kiértékelése során referenciajelként használtuk fel.



1. ábra: A pumpa-próba ellipszométer sematikus ábrája.

A próbajelet ezt követően az ellipszométer karjába továbbítottuk, ahol áthaladt egy polarizátoron, és ezt követően a beesési síkra merőleges, tehát s-polarizált állapotúvá vált. A polarizátort egy akromatikus negyedhullámlemez követett, melynek az optikai tengelyét a mérések során 0° és 350° között állítottuk, így változtatva a jel polarizációs tulajdonságát. A próbajelet egy $3\times$ nagyítású optikai mikroszkóp segítségével a germánium minta felszínére fókuszáltuk, majd a reflektálódott fényt egy $2\times$ nagyítású objektívvel kollimáltuk. A mintát elhagyó nyalábot egy további polarizátoron (analizátor) vezettük keresztül. A polarizációs iránya ennek az elemnek a beesési síkkal 45° -os szöget zárt be. A mintáról reflektálódó jelet egy optikai szálba vezettük és a spektrumát egy OceanOptics QE65000 spektrométerrel rögzítettük.

Az elrendezés másik ága a pumpa karnak nevezett rész, mely a nyalábosztót követően késleltető ágból, azaz egy finomeltolóra szerelt saroktükrökből, valamint egy 150 mm-es fókusz távolságú akromatikus fókuszáló lencséből áll. Az eltoló finomsága $10\ \mu\text{m}$ volt, mellyel így nagyjából 65 fs pontossággal lehetett beállítani a pumpa jel késleltetését. A fókuszált pumpa nyaláb és így a gerjesztett folt átmérője a germánium felületén $\sim 600\ \mu\text{m}$ volt.

2.1 Adatvisszafejtés

Az ellipszometriai mérések a mintáról visszaverődő fény polarizációs állapotában bekövetkező változások detektálásán alapulnak. Ennek méréséhez folytonos megvilágítás esetén a kompenzátort forgatják mérés közben, amely révén a mintát folytonosan változó polarizációs állapotú fény világítja ki. A mintáról visszaverődő fénynek csak az a része éri el a detektort, amit az adott szögben álló második polarizátor, az analizátor átenged. A detektorra eső, ily módon változó intenzitás modulációs amplitúdójából lehet következtetni arra, hogy a minta milyen módon változtatja meg a rá eső fény polarizációs állapotát. Impulzusüzemű lézerrel történő kivilágítás esetén egy kvázi-forgókompenzátoros mérést valósítottunk meg oly módon, hogy a minta adott pontjára eső adott számú lézerimpulzus jelének átlagolása után 10° -kal elforgattuk a kompenzátort, és egy érintetlen területen végeztük el az újabb besugárzást. Ezt ismételtük addig, amíg a kompenzátor teljes fordulatot tett. A felvett pontokból kirajzolódó modulált intenzitást a következő formulával lehet leírni:

$$I(C) = K \cdot [A_0 + A_2 \cdot \cos(2 \cdot C) + B_2 \cdot \sin(2 \cdot C) + A_4 \cdot \cos(4 \cdot C) + B_4 \cdot \sin(4 \cdot C)],$$

ahol C a kompenzátor szögállása, A_0 , A_2 , B_2 , A_4 és B_4 az ún. Fourier-együtthatók illesztésből meghatározhatók. Ezek segítségével, és a kompenzátor amplitúdó-áteresztési és fázistolási paramétereit (x_c , y_c , and z_c) figyelembe véve felírhatjuk az N , C és S mennyiségekre vonatkozó összefüggéseket:

$$N = \cos(2\Psi) = \frac{2 \cdot A_4}{(y_c - 1) \left(A_0 + A_4 \frac{y_c + 1}{y_c - 1} \right)} = \frac{2 \cdot A_4}{(y_c - 1)M}; \quad C = \sin(2\Psi) \cos(\Delta) = -\frac{2B_4}{(y_c - 1)M} \text{ és}$$

$$S = \sin(2\Psi) \sin(\Delta) = \frac{B_2}{z_c \cdot M} - \frac{2B_4 \cdot x_c}{z_c \cdot M(y_c - 1)},$$

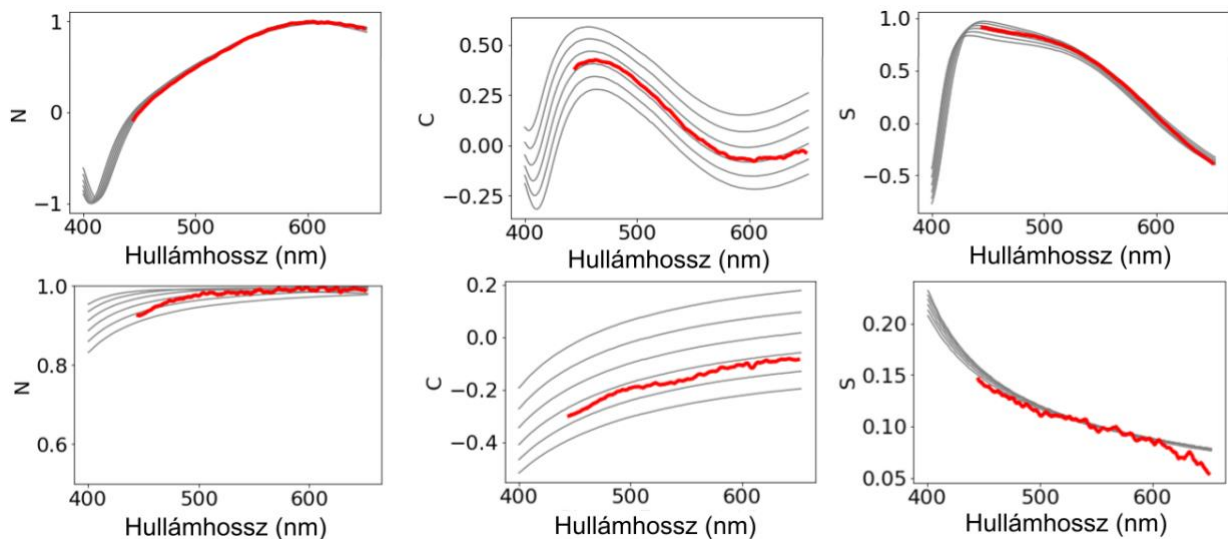
amelyekből az ellipszometriában általában használt Ψ és Δ spektrumok a következő képpen adódnak:

$$\Psi := \frac{1}{2} \cdot \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{C^2 + S^2}}{N} \right) \text{ és } \Delta := \tan^{-1} \left(\frac{S}{C} \right).$$

Az így kapott spektrumok egyértelműen jellemzik a minta polarizációs állapotra gyakorolt hatását (Ψ a mintára eső fény egymásra merőleges térerősség-komponenseinek amplitúdójára gyakorolt hatását, Δ pedig a köztük előidézt fázisváltozást jellemzi), és segítségükkel a mintát jellemző dielektromos függvény értékei modellezési eljárással meghatározhatók.

2.2 Kalibráció

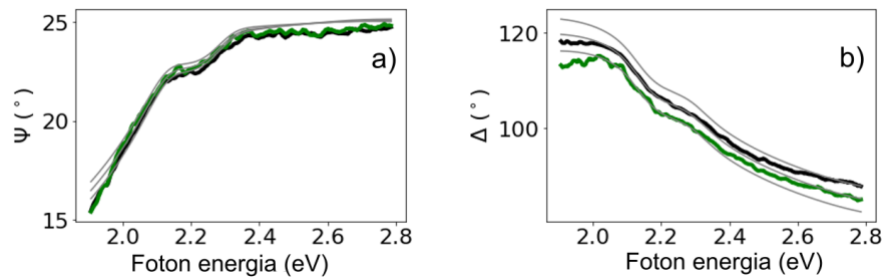
A kísérleti elrendezéssel, csak a próbaimpulzusok használatával rögzített N, C és S adatsorokat egy kereskedelmi forgalomban kapható ellipszométerrel (Woollam M2000) mért adatsorokkal összevetve elvégeztük az eszköz kalibrációját. A 2. ábrán a beesési szög kalibrációja látható egy 270 nm-es SiO₂ réteggel bevont Si hordozó, és egy natív oxidréteggel bevont Si hordozó esetén.



2. ábra: Beesési szög kalibrációja 270 nm-es SiO₂ réteggel (felső sor) és natív oxidréteggel (alsó sor) bevont Si hordozó esetén. A piros görbék a pumpa-próba elrendezéssel mért adatsort mutatják, a szürke görbék pedig a kereskedelmi forgalomban kapható ellipszométerrel mért adatok. A konvencionális mérések 74,6°, 74,8°, 75°, 75,2° és 75,4° beesés mellett történtek. A görbék együtt futásából megállapítható, hogy az időbontott mérések a tervezett 75° beesési szög mellett történnek.

3. Eredmények

A kalibrált készülékkel ezután megmértük az ellipszometriai szögek spektrumát a germánium szeleteken a pumpa és próba impulzus közötti időkésést változtatva. Először a besugárzás előtt és utána felvett ellipszometriai spektrumok összevetését végeztük el a minta különböző területeit különböző számú impulzussal besugározva. Ebből meghatároztuk azt az impulzusszámot, amit egy adott területen maradandó változások előidézése nélkül tudunk alkalmazni. A 3. ábra azt mutatja, hogy a besugárzás előtti (fekete) és besugárzás utáni (zöld) ellipszometriai spektrumok a Ψ esetén teljesen átfednek, míg a Δ esetén csak kismértékben térnek el kismértékű felületi változásra utalva. A szürke görbék ugyanezen területeken a Woollam M2000 ellipszométerrel rögzített spektrumok.



3. ábra: A germánium mintán lézeres kezelés előtt (fekete) és után (zöld) rögzített ellipszometriai spektrumok.

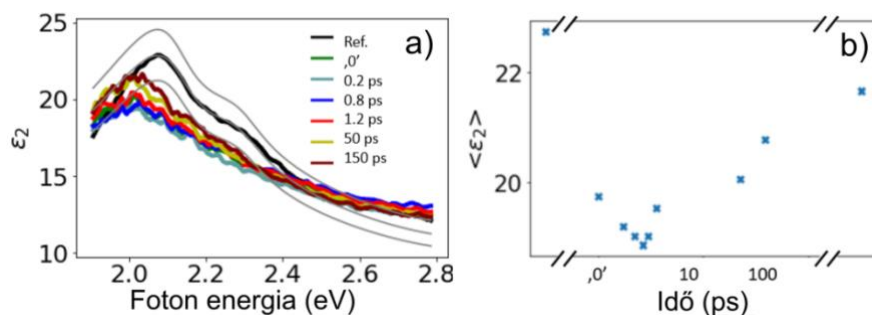
Az ellipszometriai spektrumok közvetlenül átszámolhatók ún. pszeudó dielektromos állandóvá a következő összefüggés alapján:

$$\varepsilon = \sin^2 \theta_1 \cdot \left[1 + \tan^2 \theta_1 \cdot \left(\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \right],$$

ahol θ_1 a beesési szög, ρ pedig a mintára jellemző komplex reflexiók együttható, amely az ellipszometriai szögekből a következő képpen számolható:

$$\rho = \tan \Psi \cdot e^{i\Delta}.$$

A pszeudó dielektromos állandó tömb anyagok esetén a vizsgált minta dielektromos állandójának felel meg, rétegrendszerek esetén a rétegrendszer tulajdonságait is magában hordozza. A mért ellipszometriai adatsorokat átváltva pszeudó dielektromos állandóvá megállapítható, hogy a lézeres gerjesztés hatására a kristályos germánium sáv-sáv átmeneteire jellemző éles csúcsok [5] a gerjesztést követő 1-2 ps-ban elmosódottabbá válnak, és a görbék csak ~száz ps után nyerik vissza eredeti alakjukat (4. a) ábra).



4. ábra: a) A különböző késleltetési időkhöz tartozó ε_2 spektrumok. b) A ε_2 változásai 2,1 eV fotonenergián (590 nm-es hullámhosszon).

Az elmosódottság mellett a sáv-sáv átmenethez köthető abszorpciós sávok amplitúdója is lecsökken. Ezt szemlélteti a 4. b) ábra, ahol a 2,1 eV-os fotonenergián megfigyelhető csúcs amplitúdója látható a fotonenergia függvényében. Az első néhány száz femtoszekundum alatt a kiválasztott csúcs amplitúdója gyorsan lecsökken, majd kismértékben nő, de a kiindulási értékre csak több mint 100 ps után tér vissza. Mivel a dielektromos állandó képzetes része az állapotsűrűséggel van kapcsolatban, a csúcs amplitúdójának csökkenése a hozzá köthető sáv-sávátmenetek valószínűségének lecsökkenését jelzi összefüggésben azzal, hogy a lézeres gerjesztés hatására a vezetési sávban elérhető kötött elektronok száma lecsökken, miközben a szabadelektron koncentráció megnövekszik. A szabadelektronok koncentrációja csak hosszú idő alatt (~ 100 ps) esik vissza a mérhető mérték alá.

4. Összefoglalás

A pumpa-próba ellipszometriai elrendezéssel a germánium optikai tulajdonságaiban lézeres besugárzás hatására létrejövő változásokat vizsgáltuk. A mért ellipszometriai spektrumokból meghatároztuk a germánium dielektromos állandóját, és ennek változásait a sáv-sáv átmenetnek megfelelő fotonenergián. A megfigyelt változások a lézerpulzus által gerjesztett szabad elektronok megjelenésével magyarázhatóak, így a változás dinamikája alapján megállapítható, hogy a szabad elektronok a gerjesztés utáni első pikoszekundum alatt megjelennek, és koncentrációjuk csak 100 ps után esik vissza.

5. Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-*Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben*. Csontos János köszönettel tartozik az Emberi Erőforrások Minisztériumának, az általuk kiírt Nemzeti Tehetség Program keretében elnyert (NTP-NFTÖ-19-B-0290) ösztöndíjért.

Irodalom

- [1] H. Yoneda, H. Morikami, K. Ueda, R. M. More, Phys. Rev. Lett. **91**, 075004 (2003).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.075004>
- [2] S. Rapp, M. Kaiser, M. Schmidt, H. P. Huber, Opt. Exp. **24**, 17572 (2016).
<https://doi.org/10.1364/OE.24.017572>
- [3] J. Csontos, Z. Tóth, Z. Pápa, B. Gábor, M. Füle, B. Gilicze, J. Budai, App. Surf. Sci. **421**, 325 (2017).
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.03.186>
- [4] T. Pflug, J. Wang, M. Olbrich, M. Frank, A. Horn, Appl. Phys. A **124**, 116 (2018).
<https://doi.org/10.1007/s00339-018-1550-4>
- [5] S. Espinoza, S. Richter, M. Rebarz, O. Herrfurth, R. Schmidt-Grund, J. Andreasson, and S. Zollner Appl. Phys. Lett. **115**, 052105 (2019).
<https://doi.org/10.1063/1.5109927>

SOFT X-RAY AR⁺⁸ LASERS AND WAKE-FIELD ELECTRON ACCELERATORS BY USING LOW-CURRENT CAPILLARY Z-PINCHES

B. Fekete¹, M. Kiss¹, A. A. Shapolov¹, S. Szatmari², S.V. Kukhlevsky¹

¹*Institute of Physics, University of Pecs, Ifjusag u. 6, 7624 Pecs, Hungary*

²*Institute of Experimental Physics, University of Szeged, Dom Ter 9, 6720 Szeged, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.7>

1. Introduction

The soft X-ray (46.9 nm) Ar⁺⁸ lasers based on capillary discharge Z-pinch plasmas require the excitation pulses with short (a few hundred ns) periods and high (a few tens kA-s) amplitudes. Such pulses are usually produced by high-voltage (up to ~ 800 kV) Marx generators in a C-C charge-transfer scheme. The Ar⁺⁸ lasers can operate by using the capillary Z-pinch pulses with lower amplitude ($I \sim 10$ kA) and shorter ($T/2 \sim 100$ ns) current half-periods produced, for instance, by an impulse transformer driven by a high-voltage Marx-generator. Our goal is the development of compact soft X-ray lasers excited by the low current ($I_{\min} < 10$ kA) and low charge-voltage ($U < 100$ kV) pumping systems [1, 2]. Our MHD simulations, which are based on a one-fluid, two-temperature, one-dimensional magneto-hydrodynamic model [3, 4] of capillary Z-pinch discharges and atomic kinetic code, showed that the low current and low charge-voltage could be sufficient for the achievement of the mirror-less lasing. One of our pumping systems (transformerless system), does use a double Z-pinch directly produced by the Marx-generator in the three-electrode longitudinal discharge (double capillary channel). Another pumping scheme is based on the use of an impulse transformer without using the high-voltage Marx generator for the transformer primer circuit. The present study describes preliminary results of the theoretical analysis, development, and experimental investigation of these two pumping schemes. Properties of the laser-plasma channels have been analyzed by using our MHD simulations based on the aforementioned one-fluid, two-temperature, and one-dimensional magneto-hydrodynamic model and atomic kinetic code for different parameters of the pumping scheme.

The investigation of wake-field acceleration of electrons by laser pulse in plasma waveguides produced by capillary Z-pinch has been conducted in [5, 6]. In this paper, we present a theoretical investigation of the wake-field acceleration of electrons by CO₂-laser pulse with a wavelength of 10.6 μm and input peak intensity of $>10^{15}$ W/cm² in transient hydrogen-plasma waveguide produced by the capillary Z-pinch.

2. Atomic kinetic code and magnetohydrodynamic model

Refraction-reduced (effective) laser gain is given by

$$G_{eff} = \frac{\lambda^4}{8\pi\Delta\lambda} A_{ul} \left(n_{iu}^Z - n_{il}^Z \frac{g_u}{g_l} \right) - \frac{F_{cyl}}{r} \sqrt{\frac{n_e}{n_e^c}}, \quad (1)$$

where A_{ul} is the radiation decay rate, $g_{u/l}$ is the statistical weight of the upper/lower energy level, F_{cyl} is the geometrical factor and n_e^c is the critical electron density. Balance equations of the ion energy levels read

$$\frac{dn_{ik}^Z}{dt} = \sum_{m>k} n_{im}^Z [n_e (C_{km}^{ex} - C_{mk}^{de}) + A_{mk}] - n_{ik}^Z \sum_{m<k} [n_e (C_{mk}^{ex} + C_{km}^{de}) + E(\tau_{km}) A_{km}], \quad (2)$$

where C_{km}^{ex} and C_{mk}^{dx} are the excitation and de-excitation coefficients. The simplified formula of escape factor $E(\tau_{km})$ at τ_{km} optical depth is given by

$$E = 1 - \pi^{-1} \int_{-X}^X e^{-x^2} (1 - \exp[-\tau_{km} \exp[-x^2]]) dx. \quad (3)$$

The plasma parameters for the atomic kinetic code were calculated by using the magneto-hydrodynamic equations (4-9):

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r n_i)_i = 0, \quad (4)$$

$$m_i n_i \left(\frac{\partial v_r}{\partial t} + v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} \right) = J_z \frac{\partial A_z}{\partial r} - \frac{\partial p}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \pi_{rr}) + \frac{\pi_{\varphi\varphi}}{r}, \quad (5)$$

$$\frac{3}{2} n_e \left(\frac{\partial T_e}{\partial t} + v_r \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) = -\frac{p_r}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rq_r^r) - \pi_e^r \frac{\partial v_r}{\partial r} - \pi_e^{\kappa\varphi} \frac{v_r}{r} - \pi_e^{rz} \frac{\partial v_r^{ez}}{\partial r} + Q_e, \quad (6)$$

$$\frac{3}{2} n_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial t} + v_r \frac{\partial T_i}{\partial r} \right) = -\frac{p_i}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rq_i^r) - \pi_i^r \frac{\partial v_r}{\partial r} - \pi_i^{\kappa\varphi} \frac{v_r}{r} + Q_i, \quad (7)$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r A_z) = \mu_0 A_z, \quad (8)$$

$$\frac{\partial J_z}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r J_z) = \frac{e}{rm_e} \frac{\partial}{\partial r} (r \pi_z^r), \quad (9)$$

where n_e and n_i are the electron and ion densities, v_r is the plasma radial velocity, J_z is the axial current density, A_z is the axial vector potential, p is the plasma pressure, $\pi_{\alpha\beta}$ is the stress tensor, q_i^r and q_e^r are the radial ion and electron a heat flows, Q_i and Q_e are the heating power densities of ions and electrons.

3. Soft X-ray Ar⁺⁸ laser by capillary, low-current, double Z-pinch

In the argon-filled capillary, the soft x-ray ($\lambda = 46.9$ nm) Ar⁺⁸ lasers excited by the two-electrode Z-pinch discharge with the short (a few hundred ns) periods and high (a few ten kA-s) amplitudes have been investigated in the last years. In the present study, the soft x-ray Ar⁺⁸ laser pumped by the three-electrode Z-pinch discharge in the double capillary channel was modeled and experimentally investigated.

The experimental set-up, laser scheme, and diagnostics are shown in Figs. 1. The six-stage Marx generator ($C_0 \sim 5$ nF) produces ~ 200 kV output voltage. The water dielectric capacitor ($C_1 = 4.4$ nF) is connected to the Marx generator through the inductance coil ($L \sim 6 \mu\text{H}$). The two Ar⁺⁸-plasma channels were generated inside the 3 mm-inner-diameter alumina capillary during the discharge of C_1 switched by the water spark gap (SG).

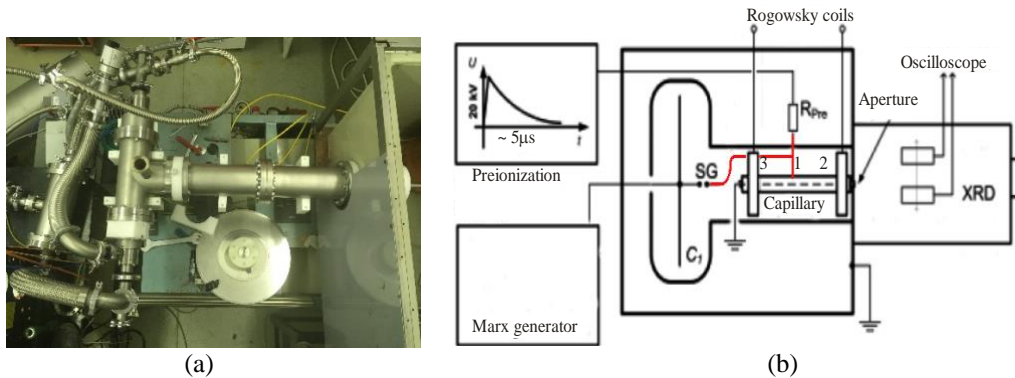


Fig.1

Photo (a) and scheme (b) of the laser experimental set-up and diagnostics of Ar⁺⁸ laser.

The pumping ($I \sim 8$ kA, $T/2 \sim 175$ ns) and pre-ionization ($I \sim 20$ A, $t_{RC} \sim 5$ μ s) electric currents flowing through the double plasma channel ($2l_{pl} = 2 \times 18$ cm) were measured by Rogowsky coils. Soft X-ray emission was detected by a fast vacuum X-ray photodiode (XRD).

The examples of pumping currents ($I \sim 8$ kA, $T/2 \sim 175$ ns) flowing through the two plasma channels of the double Z-pinch discharge are shown in Fig. 2 (a).

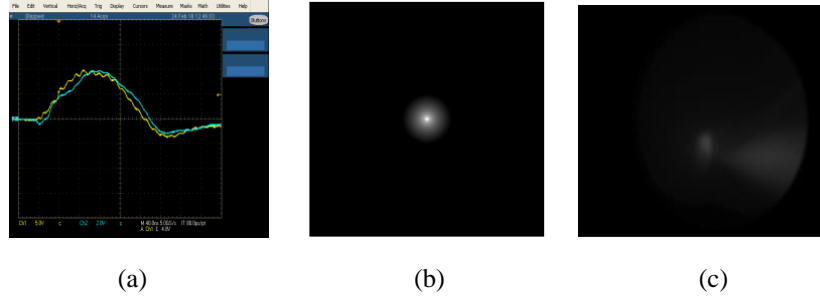


Fig.2

(a) The pumping currents in the two plasma channels. The modeled (b) and experimental (c) laser beams.

Figure 2 also demonstrates the modeled (b) and experimental (c) intensity distributions in the Ar^{+8} -laser beam. The relatively low intensity of the laser beam (c) is attributed to the asymmetries and fluctuations of the pumping currents (Fig. 2 (a)) in the two plasma channels.

The computer simulations and experimental results have shown that the low inductance of the double plasma channel provides the pumping currents with shorter amplitudes for more effective pumping of the capillary Ar^{+8} -lasers. While the fluctuations and asymmetries of both the pre-ionization and main-pumping (Fig. 2 (a)) currents in the plasma channels impose limits on the stability of the three-electrode Z-pinch and the laser output.

4. Soft X-ray Ar^{+8} laser using impulse transformer

The Ar^{+8} lasers can operate by using the capillary Z-pinch pulses produced by impulse transformers driven by the high-voltage Marx-generator. In the present study, the soft x-ray Ar^{+8} laser is pumped by the Marx-less system that uses the 1:4 auto step-up impulse transformer. The energy was stored by a capacitor with the stored energy $E \sim 100$ J. In the case of 15-25 kV primary-winding voltage, under optimal conditions, we achieved 90-100 kV output pulses with current-amplitude ~ 8 kA and rise-time ~ 80 ns.

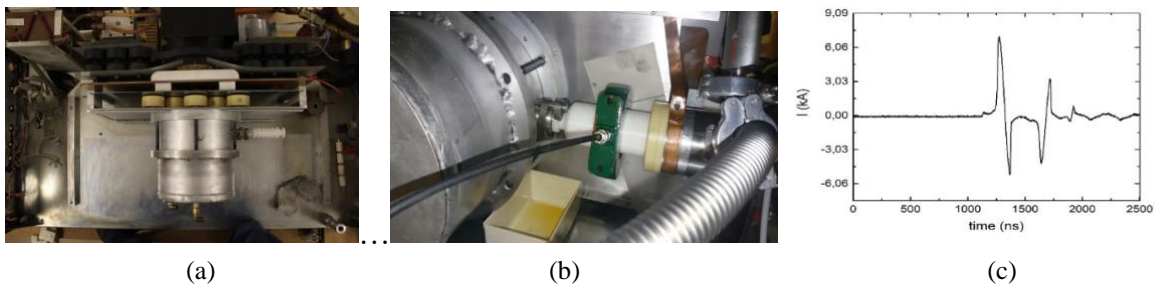
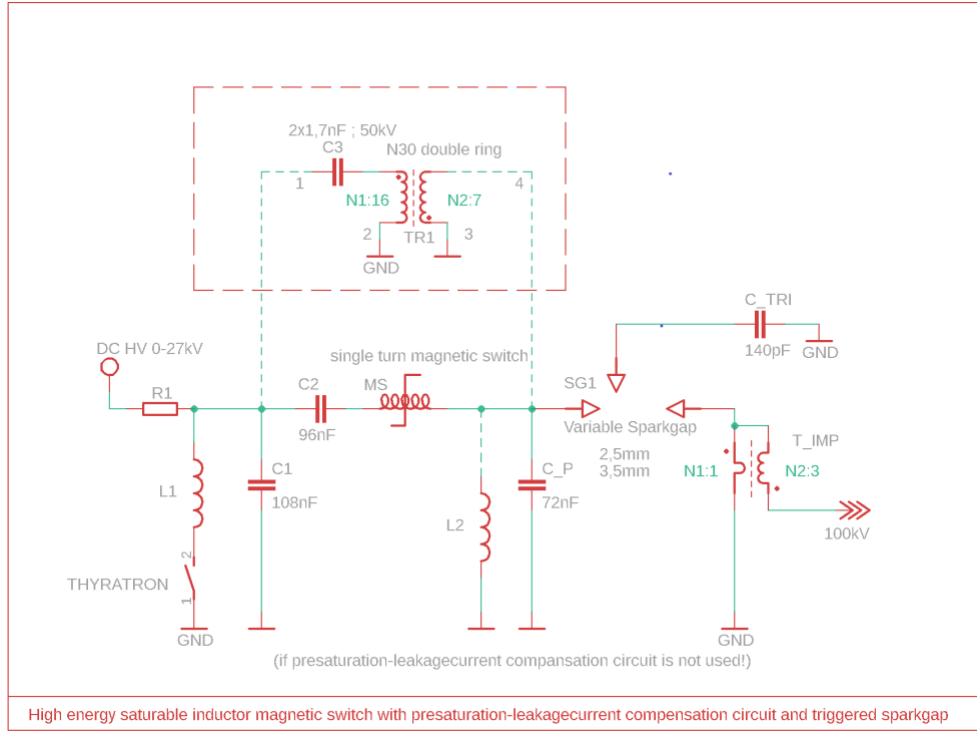


Fig.3

The (a) and (b) photos of the pumping system based on the use of impulse transformer. (c) The pumping current.

The experiments with the pumping system based on the use of an impulse transformer showed that the pumping power is not sufficient for the laser operation. Our new ~ 3 times-more-powerful transformer-based system is shown in Fig. 4. The experiments with the new system are in progress.



(a)



(b)

Fig.4

The scheme (a) and photo (b) of our new more powerful pumping system based on the use of impulse transformer.

5. Wakefield acceleration of electrons in plasma-waveguides produced by capillary Z-pinches

The waveguide properties of the capillary Z-pinch plasma were obtained from space and frequency-dependent wave equation that combines the attenuated charged particle inertia and the light wave effects in the plasma for the ideal Gaussian laser beam. For a simulation of the temporal and spatial evolution of plasma variables during the capillary discharge, we used our MHD model complemented with atomic data of hydrogen. For a simulation of the wake-field acceleration, we used the particle-in-cell (PIC) model of acceleration of electrons combined with the MHD model. The model can be summarized as follows. Newton's 2nd law for j-th electron with relativistic correction is given by

$$\frac{d}{dt}(m_e \gamma^j \vec{v}_e^j) = \vec{F} \quad (10)$$

where m_e is the electron rest mass, $\gamma^j = (1 - \vec{v}_e^{j2} / c^2)^{-1/2}$ is the relativistic factor, and $\vec{F} = \vec{F}_e + \vec{F}_p$ is the force acting on electron. It is superposition of two most dominant electric and ponderomotive forces:

$$\vec{F} = -e\vec{E} - \frac{e^2 \nabla \vec{E}_L^2}{4m_e \omega_0^2} \quad (11)$$

Here, $\vec{E} = -\nabla U$ is the electric field caused by charge separation, \vec{E}_L is the electric field amplitude of laser and ω is the central angular frequency of laser pulse. Electric field caused by charge separation can be obtained from Poisson's equation

$$-\nabla^2 U = \rho / \epsilon_0 \quad (12)$$

where $\rho = \langle Z \rangle en_i - en_e$ is the charge density. In the discrete case of PIC model, the expression in bracket can be written as follows

$$\rho^d = e(N_i - N_e) = e \sum_{j=1}^{N_i} \int_{\Omega} \delta(r - q_i^j) d^3r - e \sum_{k=1}^N \int_{\Omega} \delta(r - q_e^k) d^3r \quad (18)$$

where q_e^j and q_i^j are the positions of j-th electron and ion. Combining these equations, we get the system of equations of density perturbation model that includes the following equations

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + \omega_{pe}^2 \right) \gamma \delta n_e = \nabla \cdot \left(\frac{e^2 n_{e0}}{4m_e^2 \omega_0^2} \nabla \vec{E}_L^2 \right) - \frac{e}{m_e} \vec{E} \cdot \nabla n_{e0} \quad (13)$$

$$\nabla \cdot \vec{E} = -\frac{e}{\epsilon_0} \delta n_e \quad (14)$$

$$\gamma = \left(1 + \frac{e^2 \vec{E}_L^2}{2m_e^2 c^2 (\omega_0^2 + f_{ei}^2)} \right)^{1/2} \quad (30)$$

The evolution of the electron density and energy gain during the acceleration was computed by using the PIC model for different wave-guiding regimes, which occur at the propagation time of 0-10 ps (Fig. 5). The studies were conducted for the input peak intensity of 10^{18} W/cm^2 . The peak value of the Z-pinch current pulse, half-cycle duration, and the initial gas pressure were set to 10 kA, 100 ns, and 1.1 mbar, respectively.

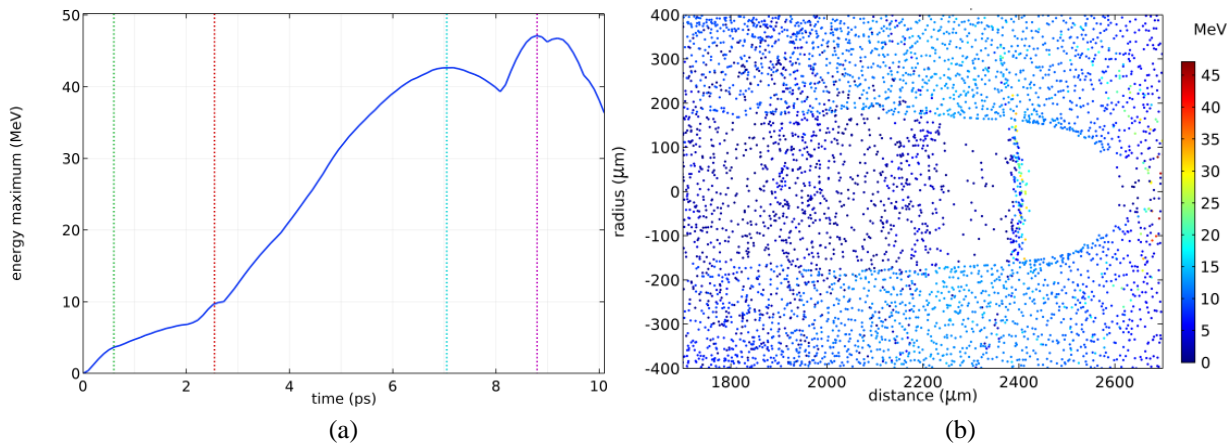


Fig.5

(a) The maximum electron energy vs time. (b) The energy and spatial distribution of electrons at 9 ps.

Simulations demonstrated the repetitive focusing and defocusing patterns with intensity increase at the focal points. The quasi-synchronization of the electron energy maxima with the inflection points

between peaks of the intensity of the guided laser beam was demonstrated. The effect can be used for the optimization of the electron acceleration in plasma waveguides produced by the capillary Z-pinch.

Summary

The soft x-ray Ar^{+8} lasers and wake-field electron accelerators in the low-current capillary Z-pinches have been investigated theoretically and experimentally. The presented studies showed that the low inductance of the double plasma channel provides the pumping currents with shorter amplitudes for more effective pumping of the capillary Ar^{+8} -lasers. While the fluctuations and asymmetries of both the pre-ionization and main-pumping currents in the plasma channels impose limits on the stability of the three-electrode Z-pinch and the laser output. The experiments with the low-power pumping system based on the use of an impulse transformer showed that the pumping power is not sufficient for the laser operation. The experiments with our new ~ 3 times-more-powerful transformer-based system are in progress. Our computer simulations of the wake-field electron accelerators in the low-current capillary Z-pinch demonstrated the repetitive focusing and defocusing patterns with intensity increase at the focal points. The synchronization of the electron energy maxima with the inflection points between peaks of the intensity of the guided laser beam was demonstrated. The effect can be used for the optimization of the wake-field electron acceleration in plasma waveguides produced by the capillary Z-pinch.

Acknowledgements

The project was supported by grant EFOP-3.6.2-16-2017-00005 entitled Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures, and biological systems.

References

- [1] Y. Sakai, T. Komatsu, I. Song, M. Watanabe, G. H. Kim, and E. Hotta, Review of Scientific Instruments **81**, 013303 (2010).
<https://doi.org/10.1063/1.3276705>
- [2] C.A. Tan and K.H. Kwek, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 4787 (2007).
<https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/16/008>
- [3] P. V. Sasorov, N. A. Bobrova, and O. G. Olkhovskaya, The two-temperature equations of magnetic hydrodynamics of the plasma (Keldysh Institute Preprints, 2015).
- [4] A. A. Shapolov, M. Kiss, and S.V. Kukhlevsky, IEEE Trans. Plasma Sci. **46**, 3886 (2018).
<https://doi.org/10.1109/TPS.2018.2841646>
- [5] T. Hosokai T et al., Opt. Lett. **25**, 10 (2000).
<https://doi.org/10.1364/OL.25.000010>
- [6] A. Zigler A et al., Appl. Phy. Lett. **113**, 183505 (2018).
<https://doi.org/10.1063/1.5046400>

LOW CONCENTRATION EOSIN STAINING FOR HIGH CHEMICAL CONTRAST NONLINEAR MICROSCOPE MOSAIC IMAGING OF SKIN ALTERATIONS IN PSEUDOXANTHOMA ELASTICUM

Luca Fésűs^{1,2}, Ludovic Martin,³ Norbert Wikonkál,^{1,2} Márta Medvecz² and Robert Szipőcs¹

¹ Wigner RCP, Inst. for Solid State Physics and Optics, P.O. Box 49, H-1525 Budapest, Hungary

² Department of Dermatology, Semmelweis University, H-1085 Budapest, Hungary

³ PXE Reference Center (MAGEC Nord), Angers University Hospital, Angers, France

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.8>

1. Introduction

Pseudoxanthoma elasticum (PXE, OMIM#264800) is an autosomal recessive metabolic disorder characterized by progressive ectopic mineralization of soft connective tissue [1]. To date, diagnosis of PXE is confirmed with skin biopsy and/or genotyping. Histopathology findings include fragmented, clumped and mineralized elastic fibers, and calcium deposits in the mid-dermis, mainly consisting of calcium hydroxyapatite and calcium hydrogen phosphate [2]. According to ultrastructural studies, two types of calcification were described: fine precipitates inside the elastic fibers in their center and bulky deposits which by surrounding the fibers, lead to deformation and breakage [3]. Coiled, split collagen fibers with irregular diameter and flower-like collagen fibrils are also observed sometimes [4].

Nonlinear microscopy (NLM) is a high-spatial resolution imaging technique that has been increasingly used in dermatological research including non-invasive detection of skin cancer [5] and stain-free examination of dermal connective tissue alterations [6-8]. Among the different NLM modalities, two-photon excitation fluorescence (TPEF) is suitable for the visualization of endogenous fluorophores, such as elastin and keratin, whereas chiral structure collagen generates second-harmonic generation (SHG) signal [9].

Recently, we have shown that NLM is able to visualize the histopathological alterations of the mid-dermis in PXE-affected skin using formalin fixed, paraffin embedded (FFPE) and then deparaffinized PXE sections. Besides SHG imaging of collagen, we successfully visualized calcification and detrimental changes to elastic fibers with TPEF [10]. However, in this preliminary study, we captured two-channel NLM images (SHG and TPEF), where TPEF signals originating from elastin and calcification were detected by a single NDD channel. Thus, their optical differentiation was not feasible and solely was based on their morphology.

This year we have investigated fluorescent properties of these two tissue components and found that in fresh-frozen PXE sections, they have a broad, overlapping emission spectrum [11,12]. Introducing a normalized 3D color vector representation of their emission spectra, we have learned that distinction of elastin and calcification for high contrast imaging is rather difficult (no data shown here). However, we realized that by applying some low concentration, (hence low absorption) eosin staining during the deparaffinization process of PXE sections, their spectral distribution considerably differs from each other, since eosin, as a pink (fluorescent) staining for basic tissue components has a relatively higher concentration in calcification. As a consequence, these two tissue components can be optically distinguished by laser scanning NLM, even without damaging the tissue due to laser light absorption in stained sections.

In this work our aim was to develop an improved imaging and mathematical apparatus (spectral decomposition) to obtain three-color mosaic imaging of deparaffinized PXE sections using NLM, where elastin, calcification and collagen is visualized with distinct colors, to make images suitable for quantitative analysis and further investigation. By applying an artificial red, green, and blue color encoding for enhanced mapping co-localization of mineralization and elastic fibers, high spatial resolution, high contrast histological mosaic images have been recorded for low concentration eosin stained, deparaffinized PXE sections.

2. Experimental design

2.1 Sample preparation

Skin biopsy samples from PXE-affected areas of confirmed PXE patients were formalin-fixed and paraffin-embedded. For the NLM imaging, 20 μm thick, deparaffinized, sections were prepared. For deparaffinization alcohol was used, in which a low concentration eosin stain was solved. As a result, the deparaffinized PXE sections had a light-pink colour in contrast to standard (white colour) deparaffinized PXE sections. For conventional histopathology, sections from the same skin biopsies were stained with Weigert's elastic (WE) and von Kossa (VK) stains. Histopathologic evaluation was performed by an expert dermatopathologist. PXE patients were diagnosed and managed at the PXE Reference Center (MAGEC Nord), Angers University Hospital, Angers, France, (protocol identifier: NCT01446380). Our present study was approved by the local Ethics Committee in Budapest, Hungary (SE TUKEB no. 193/2017).

2.2 Nonlinear microscope imaging

NLM imaging was carried out with a ~ 20 MHz repetition rate, sub-ps Ti:sapphire laser (*FemtoRose 300 TUN LC*, R&D Ultrafast Lasers Ltd., Budapest, Hungary, (R&D Ltd.)) operating at 800 nm. To capture images, an Axio Examiner LSM 7 MP laser scanning two photon microscope system (Carl Zeiss, Germany) with modified detection optics was used with a 20x water immersion objective (W-Plan – APOCHROMAT 20x/1.0 DIC (UV) VIS-IR, Carl Zeiss, Germany). Individual image size was $420 \times 420 \mu\text{m}^2$. Further details about the imaging setup can be found in Ref. [7]. TPEF and SHG signals were collected by two NDD detectors and visualized by the ZEN 3.0 SR software (Carl Zeiss AG, Germany). 460/50 nm (cyan) and 590/45 nm (orange) bandpass filters were used to capture TPEF signals of elastin and calcification, respectively, whereas for SHG, a 405/20 nm (violet, displayed as magenta) bandpass filter was used. In order to compare the results with our previous work, we used a 525/500 nm (green) filter as well. Mosaic images with an individual image size of $420 \times 420 \mu\text{m}^2$ were obtained with the use of a custom-made stepping motor system (*Mosaic v1.0*, R&D Ltd.). The acquired TPEF and SHG images were processed and assembled into two- or three-color mosaic images with ImageJ v1.46 software (NIH, Bethesda, MD, USA).

2.3 Three-channel decomposition and inverse matrix calculation

Overlapping emission spectra result in correlated detected signals, where signal intensities appearing in different detection channels are proportional to concentration of a given tissue component [13,14]. Three-channel decomposition has been reported in SRS microscopy [15]. During our work, we have developed a similar algorithm for decomposition of mixed TPEF and SHG signals and deduced contribution of each excited substance.

Briefly, first we acquired TPEF signals with cyan and orange emission filters and SHG signal with a violet filter from manually selected $132 \times 132 \mu\text{m}^2$ regions with the highest SHG (collagen), TPEF_{cyan} (elastin) and TPEF_{orange} (calcium deposits) signal intensities, respectively (I_{405} , I_{460} , I_{590}).

Selected regions correspond to areas where concentration of collagen, elastin and calcium deposit appears the highest, respectively. I_{405} , I_{460} , I_{590} are linear combinations of light emission from tissue components described by their concentrations (collagen (C_{Co}), elastin (C_E) and calcium deposits (C_{Ca})). Contribution of each tissue component to measured SHG and TPEF intensities is described by matrix coefficients $a_{i,j}$ as listed in Eq. 1. In each region, a 3x3 pixel area with the highest intensity value pixel was identified. Average I_{405} , I_{460} , I_{590} signal intensities were measured within these three areas, respectively. Measured average intensities were then normalized to their maximum, respectively. These computed intensity ratios were then used as matrix coefficients in transfer matrix $[A]$ (Eq.1).

$$\begin{bmatrix} I_{405}(x, y) \\ I_{460}(x, y) \\ I_{590}(x, y) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{405, Co} & a_{405, E} & a_{405, Ca} \\ a_{460, Co} & a_{460, E} & a_{460, Ca} \\ a_{590, Co} & a_{590, E} & a_{590, Ca} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_{Co}(x, y) \\ C_E(x, y) \\ C_{Ca}(x, y) \end{bmatrix} \quad (\text{Eq.1})$$

In vector form, measured fluorescence intensity I can be calculated as concentration vector \underline{C} multiplied by transfer matrix $[A]$, i.e. $I = AC$. From this, inverse matrix of $[A]$ can be defined. After calculation of matrix elements of $[A]^{-1}$, relative concentrations of tissue components (at each pixel) can be deduced such as $\underline{C} = A^{-1}I$. Having matrix elements of $[A]^{-1}$ calculated, image post-processing has been applied to each pixel (x,y) of our three-channel images $I_{(x,y)}$ in order to get concentration maps $\underline{C}_{(x,y)}$. Decomposed single channel concentration maps have been merged and assembled into three-color mosaic images.

3. Results

3.1 Histopathology

Mid-dermis of PXE patient showed remarkable changes. WE staining displayed irregular, fragmented, thickened elastic fibers along with mineralized elastin (no Figure shown). VK staining exhibited mineral deposition and calcified elastic fiber clumps in mid-dermis. Disrupted, coiled collagen fibers around calcium deposits are also revealed. Papillary dermis and deep reticular dermis were unaffected in all patients.

3.2 NLM imaging and three-channel decomposition

In frozen and deparaffinized PXE sections, we found that emission spectra of elastin and calcification can hardly be distinguished in a four colour (viola/cyan/green/orange) vector space, however, we found that by using a low concentration eosin solution for deparaffinization these two tissue components can be optically distinguished by their fluorescence spectra: elastin exhibits a relatively higher TPEF signal in the cyan, whereas calcium deposits have relatively high TPEF signal in the orange detection channel. Reference images for determination of inverse matrix coefficients are shown in Figure 1. Linear combination of signal intensities detected in a single channel was described as discussed in Section 2.3. For simplicity, C_{Co} , C_E and C_{Ca} in Eq. 1 were set equal to 1. To exemplify, by substituting calculated coefficients we obtained transfer matrix $[A]$ for PXE sample of Patient1 (Eq.2.), and then derived inverse matrix $[A]^{-1}$ (Eq.3).

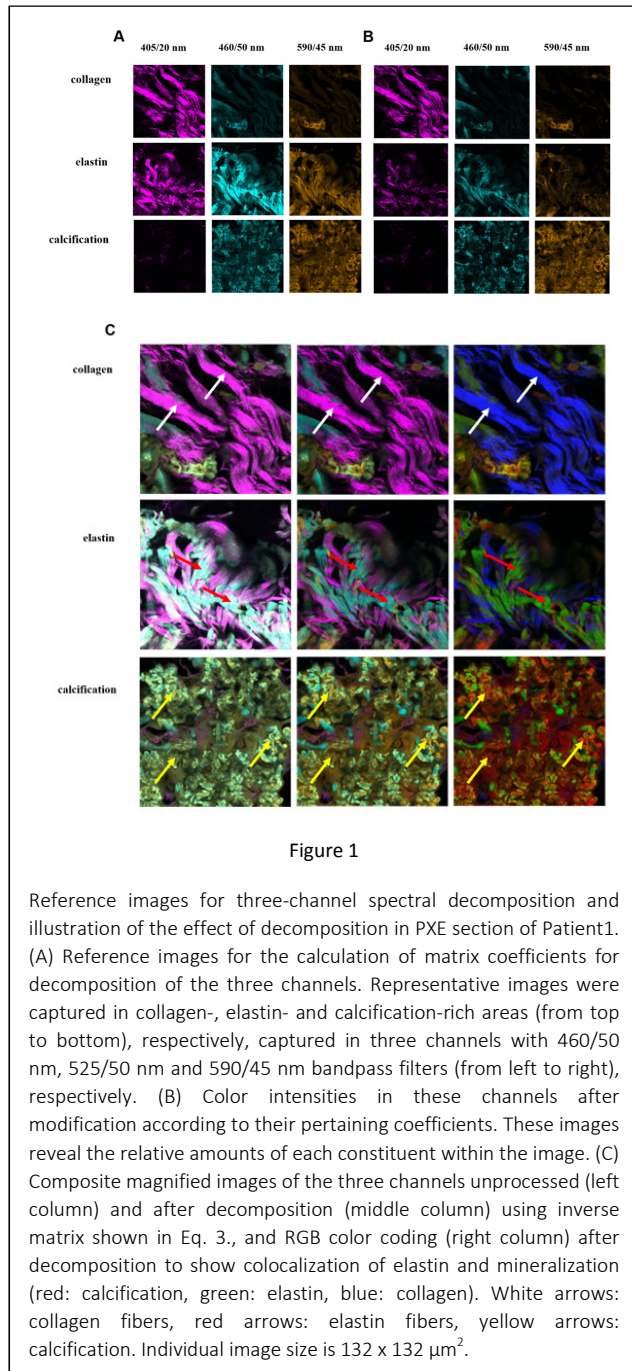
$$\begin{bmatrix} I_{405}(x, y) \\ I_{460}(x, y) \\ I_{590}(x, y) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0.134 & 0.116 \\ 0.056 & 1 & 0.356 \\ 0.038 & 0.488 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (\text{Eq.2})$$

$$\begin{bmatrix} C_{Co}(x, y) \\ C_E(x, y) \\ C_{Ca}(x, y) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1.008 & -0.089 & -0.094 \\ -0.051 & 1.243 & -0.484 \\ -0.014 & -0.670 & 1.376 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{405}(x, y) \\ I_{460}(x, y) \\ I_{590}(x, y) \end{bmatrix} \quad (\text{Eq.3})$$

As the SHG signal of collagen is measured with a narrowband bandpass filter, both elastin and calcification TPEF results in a minimal contribution to SHG signal. However, collagen does exhibit low TPEF signal that appears in the cyan and orange channels. Calcification and elastin has wide, overlapping TPEF spectra that manifests in relatively high coefficients in both cyan and orange channels. Executing image post-processing using the retrieved inverse matrix resulted in spectrally

decomposed images, where crosstalk arising from the other components is considerably reduced and hence optical signals originating from each tissue component are well separated. Figure 1C displays composite of reference images before and after decomposition.

Applying the same calculations, we assembled mosaic of composite images (Figure 2). The effect of decomposition is demonstrated in Figure 2A (original) and Figure 2B (decomposed) for three-channel mosaic image of PXE section of Patient1. As we can see, decomposition of this mosaic image enabled to separate of collagen and elastic fibers. The contrast between the TPEF signal of elastin and calcification is considerably improved and areas, which are affected by calcification, are clearly circumscribed. The papillary dermis was not affected, similarly to histopathology. Elastic fibers in the mid-dermis are fragmented and polymorphous, as shown by the $\text{TPEF}_{\text{cyan}}$ channel. Calcium deposits, revealed by the $\text{TPEF}_{\text{orange}}$ channel occupy large areas in the mid-dermis and dislocate clumped elastic fibers. In order to demonstrate the improved chemical selectivity of our presented method, two color composite mosaic image applying the SHG and green TPEF detection channels is shown in Figure 2C. In order to visualize calcified elastic fibers, we applied artificial red, green and blue colors to display calcification, elastin and collagen, respectively, after decomposition (Figure 2D). Colocalization is revealed by addition of red and green colors appearing in yellow color in Fig. 2D.



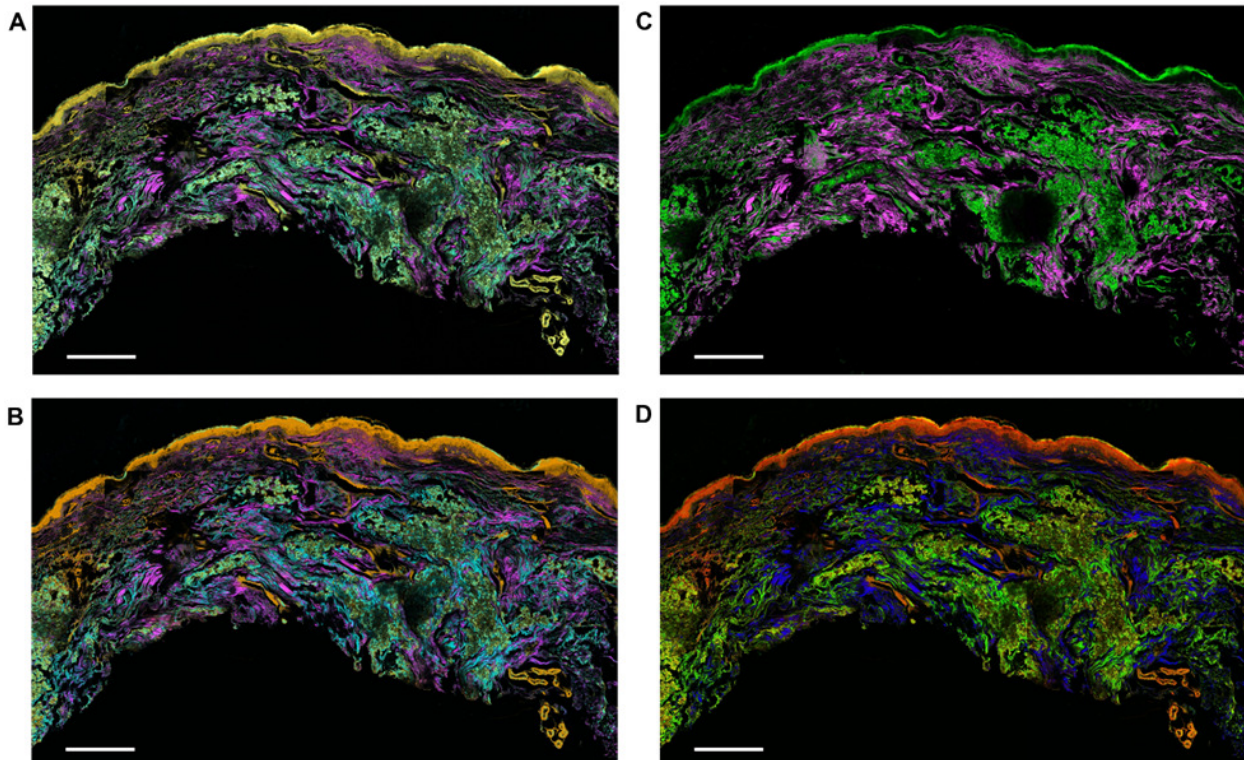


Figure 2

Composite of two-photon excitation fluorescence (TPEF) and second-harmonic generation (SHG) mosaic images of PXE-affected skin samples. Excitation wavelength is 800 nm. For images (A,B), TPEF signal is captured by using two different bandpass filters. Cyan (460/50 nm) and orange (590/45 nm) emission filters were chosen to detect high portion of TPEF signals originating from elastin and calcification, respectively, with maximum contrast for spectral decomposition. For mosaic image (C), TPEF signal of elastin and calcification together was collected by a single green (525/50 nm) bandpass filter. SHG signal of collagen was spectrally selected by a narrowband 405/20 nm filter for (A,B,C) images and displayed by magenta color. Note that keratin has a broad TPEF signal appearing in the green, orange, and to some extent, in cyan channel. Individual images of $420 \times 420 \mu\text{m}^2$ were assembled into (A,B,C,D) mosaic images of PXE-affected skin of Patient1. (A) Three-channel detection, composite mosaic image of TPEF_{cyan}, TPEF_{orange} and SHG signals. (B) Three-channel composite of TPEF_{cyan}, TPEF_{orange} and SHG mosaic images after spectral decomposition using the inverse matrix described in Eq.3. (C) Two-channel detection, composite mosaic image of SHG and green TPEF channel. (D) Artificial red, green and blue colored images (red: calcification, green: elastin, blue: collagen), colocalization of elastin and calcification appears in yellow color.

4. Discussion

Histological alterations in PXE can be observed not just in affected areas, but also in clinically healthy appearing skin, and also in patients without characteristic skin signs dermis [16]. As subtle skin changes seen in histopathology of PXE often precede organ damage, the assessment of skin status should be of primary importance.

In our present paper, we examined TPEF signals of eosin solution stained elastin and calcium deposits and SHG signal of collagen in deparaffinized PXE sections by applying different bandpass filters. Using an inverse matrix-based decomposition method, separation of the overlapping emitted signals of elastin, calcification and collagen, and precise calculation of spatial distribution of these tissue components was possible only after an eosin solution staining process. After executing decomposition, we were able to distinguish intact and calcified elastic fibers, as well as bulky calcification and clumps of fragmented elastic fibers from each other. Besides, we also showed where these colocalize within the sample. Our data suggests that our presented decomposition method has important advantageous features compared to conventional histopathology since our decomposed NLM images could be directly used for quantitative analysis using computers. Furthermore, fine structures can be better identified due high selectivity and high spatial resolution.

Acknowledgements

This research was funded by the National Research, Development and Innovation Fund of Hungary contract No. K_129047 of Wigner RCP and FK_131916 of Semmelweis University. Skin samples were provided by PXE Reference Center (MAGEC Nord), Angers University Hospital, Angers, France in the framework of COST Action No. CA16115. The authors thank Enikő Kuroli for the histopathological assessment of the skin sections.

References

- [1] J. Uitto, Q. Jiang, A. Varadi, L.G. Bercovitch, S.F. Terry, Expert Opin Orphan Drugs **2**, 567 (2014)
<https://doi.org/10.1517/21678707.2014.908702>
- [2] M.J. Hosen, A. Lamoén, A. De Paepe, O.M. Vanakker, , Scientifica (Cairo), 598262 (2012)
<https://doi.org/10.6064/2012/598262>
- [3] B. Marconi, I. Bobyr, A. Campanati, E. Molinelli, V. Consales, V.Brisigotti, M. Scarpelli, S. Racchini, A. Offidani, Intractable Rare Dis Res **4**, 113 (2015)
<https://doi.org/10.5582/irdr.2015.01014>
- [4] D.P. Germain, Orphanet J. Rare Dis. **12**, 85 (2017)
<https://doi.org/10.1186/s13023-017-0639-8>
- [5] E. Dimitrow, M. Ziemer, M.J. Koehler, J. Norgauer, K. König, P. E. M. Kaatz, J. Invest. Dermatol. **129**, 1752 (2009)
<https://doi.org/10.1038/jid.2008.439>
- [6] K. Lorincz, D. Haluszka, N. Kiss, N. Gyongyosi, A. Banvolgyi, R. Szipocs, N.M. Wikonkal, Arch. Dermatol. Res. **309**, 209 (2017)
<https://doi.org/10.1007/s00403-017-1715-6>
- [7] D. Haluszka, K. Lorincz, N. Kiss, R. Szipocs, E. Kuroli, N. Gyongyosi, N.M. Wikonkal, Biomed Opt Express **7**, 4480 (2016)
<https://doi.org/10.1364/BOE.7.004480>
- [8] N. Kiss, D. Haluszka, K. Lőrincz, E. Kuroli, J. Hársing, B. Mayer, S. Kárpáti, G. Fekete, R. Szipócs, N. Wikonkál, M. Medvecz, Arch. Dermatol. Res. **310**, 463 (2018)
<https://doi.org/10.1007/s00403-018-1835-7>
- [9] S.W. Perry, R.M. Burke, E.B. Brown, Ann. Biomed. Eng. **40**, 277 (2012)
<https://doi.org/10.1007/s10439-012-0512-9>
- [10] N. Kiss, L. Fesus, S. Bozsanyi, F. Szeri, M. Van Gils, V. Szabo, A.I. Nagy, B. Hidvegi, R. Szipocs, L. Martin, O. Vanakker, T. Aranyi, B. Merkely, N.M. Wikonkal, M. Medvecz, Lasers Med. Sci. **35**, 1821–1830 (2020)
<https://doi.org/10.1007/s10103-020-03027-w>
- [11] M. Fitzmaurice, J.O. Bordagaray, G.L. Engelmann, R. Richards0Cortum, T. Kolubayev, M.S. Feld, N.B. Ratliff, J.R. Kramer, Am. Heart J. **118**, 1028 (1989)
[https://doi.org/10.1016/0002-8703\(89\)90239-1](https://doi.org/10.1016/0002-8703(89)90239-1)
- [12] L.M. Baugh, Z. Liu, K.P. Quinn, S. Osseiran, C.L. Evans, G.S. Huggins, P.W. Hinds, L.D. Black, I. Georgakoudi, Nat Biomed Eng **1**, 914 (2017)
<https://doi.org/10.1038/s41551-017-0152-3>

- [13] P.P. Provenzano, K.W. Eliceiri, L. Yan, A. Ada-Nguema, M.W. Conklin, D.R. Inman, P.J. Keely, *Microscopy and microanalysis* **14**, 532 (2008)
<https://doi.org/10.1017/S1431927608080884>
- [14] R. Carriles, D.N. Schafer, K.E. Sheetz, J.J. Field, R. Cisek, V. Barzda, A.W. Sylvester, J.A. Squier, , *The Review of Scientific Instruments* **80**, 081101 (2009)
<https://doi.org/10.1063/1.3184828>
- [15] L. Shi, C. Zheng, Y. Shen, Z. Chen, E.S. Silveira, L. Zhang, M. Wei, C. Liu, C. de Sena-Tomas, K. Targoff, W. Min, *Nat Commun* **9**, 2995 (2018)
<https://doi.org/10.1038/s41467-018-05401-3>
- [16] N. Chassaing, L. Martin, P. Calvas, M. Le Bert, A. Hovnanian , *J. Med. Genet.* **42**, 881 (2005)
<https://doi.org/10.1136/jmg.2004.030171>

NUMERICAL SIMULATIONS OF THz PULSE GENERATION WITH TWO-COLOR LASER PULSES IN THE 2.15-15.15 μm SPECTRAL RANGE

Roland Flender¹, Adam Borzsonyi^{1,2}, Viktor Chikan^{1,3}

¹ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd., Wolfgang Sandner utca 3., Szeged, H-6728, Hungary

²Dept. of Optics and Quantum Electronics, Univ. of Szeged, Dóm tér 9., H-6720 Szeged, Hungary

³Dept. of Chemistry, Kansas State University, 213 CBC Building, Manhattan, KS 66506-0401, USA.

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.9>

1. Introduction

The terahertz (THz) pulse generation from two-color laser pulse ionized gases is an actively researched topic because of its simplicity and practical use in renewable secondary sources for ultrafast technology. In this method, the two-color laser pulses, the fundamental beam and its second harmonic are focused in ambient air or in different gases (see Fig. 1.). After the tunnel ionization, the free electrons accelerate in the external electric field of the laser pulses. When the relative phase between the fundamental and its second harmonic is $\pm\pi/2$ rad, the acceleration becomes asymmetric and a significant net electron current develops inside the plasma [1, 2]. This phase-sensitive electron current is the source of the THz pulse.

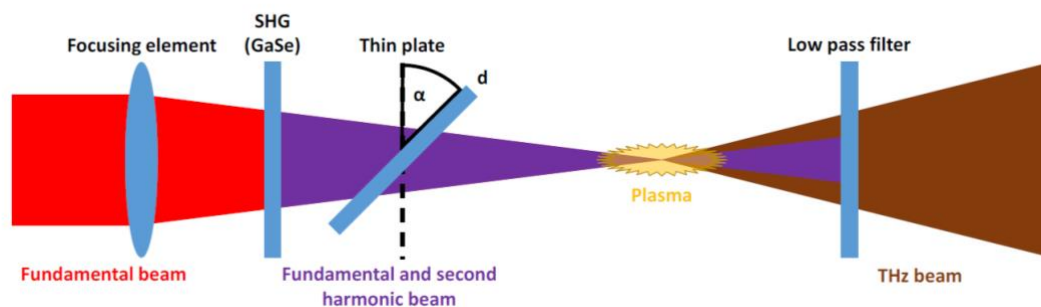


Fig.1. Schematic diagram of the THz pulse generation in air by two-color laser pulses

Several groups have demonstrated the efficiency of THz pulse generation increase with the central wavelength of the fundamental laser pulse [3-8]. A key reason behind this observation is the small temporal walk-off between the mid-infrared (MIR) two-color laser pulses compared to the shorter wavelengths [6, 7]. On the other hand, the smaller temporal walk-off makes it more difficult to control the relative phase of the two-color laser pulses.

2. Results

The laser pulse parameters for the numerical simulations are based on the MIR laser system [9, 10] located at ELI-ALPS user facility [11]. The central wavelength of this laser system is 3.2 μm and the spectral bandwidth supports 45 fs pulse duration, the pulse energy at the output window is 140 μJ . The central wavelength of the laser system is tunable between 2.5 μm and 4 μm , but in this simulation we expanded the spectral range from 2.15 μm up to 15.15 μm , while keeping the pulse duration, expressed in optical cycles and the peak power at a constant value. The investigated spectral region is defined by the gallium selenide (GaSe) crystal properties, which is used for the second harmonic generation (SHG) process.

In this research, we examined numerically the THz pulse generation in the spectral range between 2.15 μm and 15.15 μm . The THz pulse spectrum and peak of its electric field intensity in the function of the central wavelength of the fundamental pulse is shown in Fig. 1., in case of various commercially available low-pass THz filters [12]. Initially, the THz pulse electric field increase continuously with the central wavelength of the fundamental laser pulse up to 14.30 μm . The generated THz pulse electric field is hundred times stronger compared to the Ti:Sapphire lasers, which is the most commonly used lasers for this type of THz pulse generation. The mechanism behind this is that the amplitude of the THz electric field is proportional to the first derivative of the transverse electron current that is proportional to the velocity of the electrons and the density of the electrons. The velocity of the electrons is proportionate to the combined electric field and the asymmetry of this field. The asymmetry of the electric field changes significantly in the function of the central wavelength of the fundamental pulse. The asymmetry of the electric field yields faster electrons as a function of the central wavelength of the fundamental laser pulse. The velocity of the electrons increases the transverse electron current needed for the more intense THz pulse intensity [1, 2].

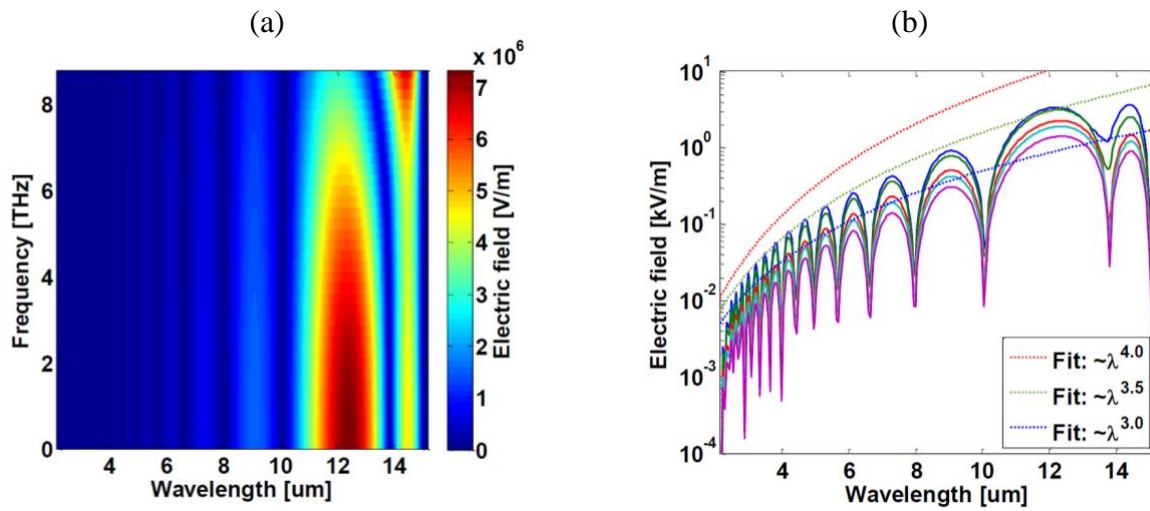


Fig.2. Terahertz pulse spectrum (a) and peak electric field (b) as a function of the fundamental pulse central wavelength in the case of different terahertz low-pass filters.

In addition to the above results, we have explored the use of barium-fluoride (BaF_2), calcium-fluoride (CaF_2) and lithium-fluoride (LiF) crystals to control the relative phase between the fundamental pulse and its second harmonic. The first two materials are alkaline earth halides [13] and the latter one is an alkali halide [14]. The relative phase control ability of these plates are shown in Fig.3.a-c.

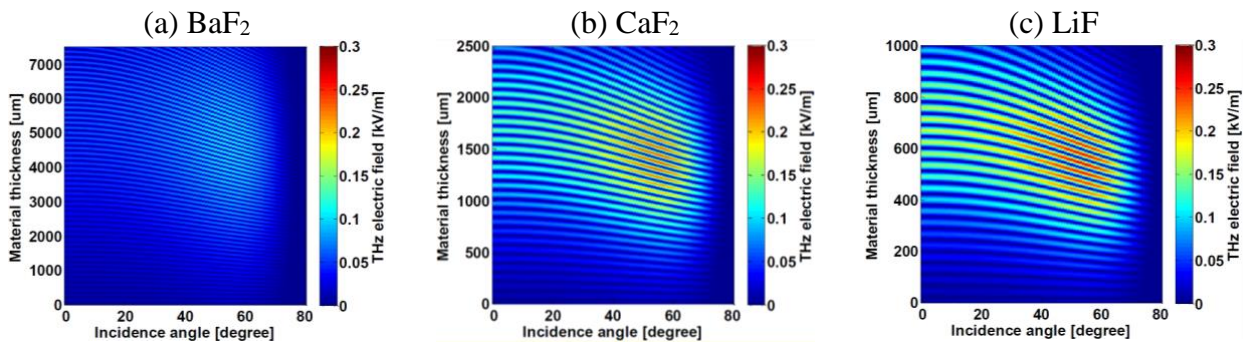


Fig. 3. Terahertz pulse peak electric field as a function of different plate's thickness and the AOI, where the materials are (a) BaF_2 , (b) CaF_2 and (c) LiF , respectively.

Let us discuss LiF (in Fig. 3.c) in particular. As one can see the LiF is capable to control the relative phase of the two-color laser pulse and initially capable to increase the generated THz pulse intensity. The phase velocity difference between the 3.2 μm and 1.6 μm in LiF is few thousand times more than in ambient air allowing the reduction of size of optical setup needed to control the phase. The optimal thickness of the LiF plate is 540 μm and the optimal incidence angle is 55.0° degree. Based on our simulations, all the three fluorides are capable to control the relative phase of the two-color laser pulses with various efficiencies.

3. Summary

In summary, we have examined the THz pulse generation in the MIR spectral region. We have found that in the spectral range from 2.15 μm up to 15.15 μm , the generated THz pulse intensity continuously increases with the fundamental pulse central wavelength up to 12.30 μm , where it reaches its maximum value. We have examined the control of the relative phase with co-propagation of the pulses through a thin plate. We have found that several fluorides are not just capable to control the relative phase of the two-color pulses, but also capable to improve the temporal overlap, whereupon they are capable to improve the THz pulse generation efficiency. We have found that the best candidate for good phase control is lithium fluoride.

Acknowledgement

The ELI-ALPS project (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) is supported by the European Union and co-financed by the European Regional Development Fund. The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-“Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems“.

References

- [1] Y. Watanabe et al. Opt. Comm. **234**, 125-129 (2004)
<https://doi.org/10.1016/j.optcom.2004.02.032>
- [2] J. Dai et al. App. Phys. Lett. **94**(2), 021117 (2009)
<https://doi.org/10.1063/1.3068501>
- [3] J. Liu et al. Nat. Phot. **4**(9), 627-631 (2010)
<https://doi.org/10.1038/nphoton.2010.165>
- [4] M. Clerici et al. Phys. Rev. Lett. **110**(25) 253901 (2013)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.253901>
- [5] A. Nguyen et al. Opt. Exp. **25**(5) 4720-4740 (2017)
<https://doi.org/10.1364/OE.25.004720>
- [6] A. Nguyen et al. Phys. Rev. A **97**(6) 063839 (2018)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.063839>
- [7] V. Y. Fedorov et al. Phys. Rev. A **97**(6) 063842 (2018)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.063842>
- [8] A. Nguyen et al. Opt. Lett. **44**(6) 1488-1491 (2019)
<https://doi.org/10.1364/OL.44.001488>
- [9] N. Thiré et al. Opt. Exp. **25**(2) 1505-1514 (2017)
<https://doi.org/10.1364/OE.25.001505>

[10] N. Thiré et al. Opt. Exp. **26**(21) 26907-26915 (2018)

<https://doi.org/10.1364/OE.26.026907>

[11] <http://www.eli-alps.hu>

[12] http://www.tydexoptics.com/products/thz_optics/thz_low_pass_filter

[13] H. H. Li, J. Phys. Chem. Ref. Data **9**(1), 161-290 (1980)

<https://doi.org/10.1063/1.555616>

[14] H. H. Li, J. Phys. Chem. Ref. Data **5**(2), 329-528 (1976)

<https://doi.org/10.1063/1.555536>

NUMERICAL STUDY OF TERAHERTZ PULSE GENERATION FROM FEW-CYCLE LASER PULSES IN THE MID-IR SPECTRAL RANGE

Roland Flender¹, Adam Borzsonyi^{1,2}, Viktor Chikan^{1,3}

¹ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd., Wolfgang Sandner utca 3., Szeged, H-6728, Hungary

²Dept. of Optics and Quantum Electronics, Univ. of Szeged, Dóm tér 9., H-6720 Szeged, Hungary

³Dept. of Chemistry, Kansas State University, 213 CBC Building, Manhattan, KS 66506-0401, USA.

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.10>

1. Introduction

The terahertz (THz) pulse generation from two-color laser pulse ionized gas is an actively researched topic since its discovery [1]. In this method, the fundamental pulse and its second harmonic pulse are focused in ambient or in different gases. After the tunnel ionization, the free electrons accelerate in the external electric field, the THz pulse generation is the most efficient, when the electrons accelerate in one direction [2, 3]. The electrons accelerate in one direction, when the external electric field is asymmetric and this occurs when the relative phase is $\pm\pi/2$ rad between the fundamental pulse and its second harmonic pulse.

Alternatively, one can use few-cycle one-color pulses to generate THz pulse with the same method. In this case, the external electric field is asymmetric intrinsically, thus it will accelerate the electrons effectively in one direction and generates THz pulse effectively. The greatest advantage of the one-color method is simplicity, that there is no need of any nonlinear crystal, therefore there is no reflection loss, no absorption loss and no dispersion. In this study we compared the THz pulse generation from one- and two-color laser pulses.

2. Results

We are particularly interested in THz pulse generation based on mid-infrared (MIR) laser source, since the efficiency is more promising with longer wavelengths compared to conventional near-infrared lasers. The laser pulse parameters for the numerical simulation are based on the MIR laser system [4, 5] located at ELI-ALPS user facility [6]. The central wavelength of this laser system is $3.2\ \mu\text{m}$ and the spectral bandwidth supports 45 fs pulse duration, the pulse energy at the output window is $140\ \mu\text{J}$. In our simulation, we changed the pulse duration from 1.0 optical cycle (10.67 fs) to 5.0 optical cycles (53.33 fs), while keeping the peak intensity at a constant value. Our simulation was based on an assumed setup shown in Fig. 1.

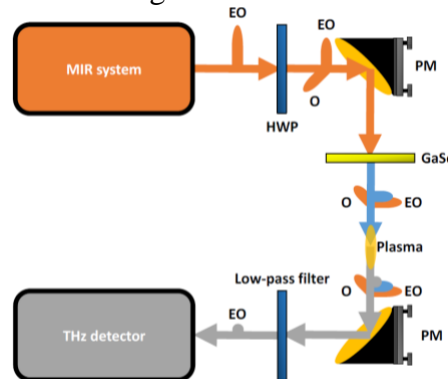


Fig.1 The schematic drawing of a virtual setup used in our simulations. EO – extraordinary polarization, O- ordinary polarization, HWP – half-wave plate, PM – parabolic mirror, GaSe – gallium selenide.

In this research, we have examined numerically the THz pulse generation with one- and two-color laser pulses (see Fig. 2.). The dependence on pulse duration and polarization angle have been investigated. By changing the polarization angle the efficiency of the second harmonic generation (SHG) can be changed. The 0° polarization angle means, that the driving laser pulse polarization is purely extraordinary, hence there is no SHG occurs in the gallium selenide (GaSe) crystal.

In general, we found that in the case of one-color method, the intensity are increasing with decreasing pulse duration (red arrows in both Fig. 2. a and b). The mechanism behind this, that with shorter pulses the external electric field are more asymmetric, which increase the THz pulse generation efficiency despite the pulses have less energy. In the case of two-color method, the intensity are decreasing with decreasing pulse duration (blue arrows in both Fig. 2. a and b). The mechanism behind this, that the external electric field are already asymmetric and with shorter pulses the pulses have less energy, which decrease the THz pulse generation efficiency.

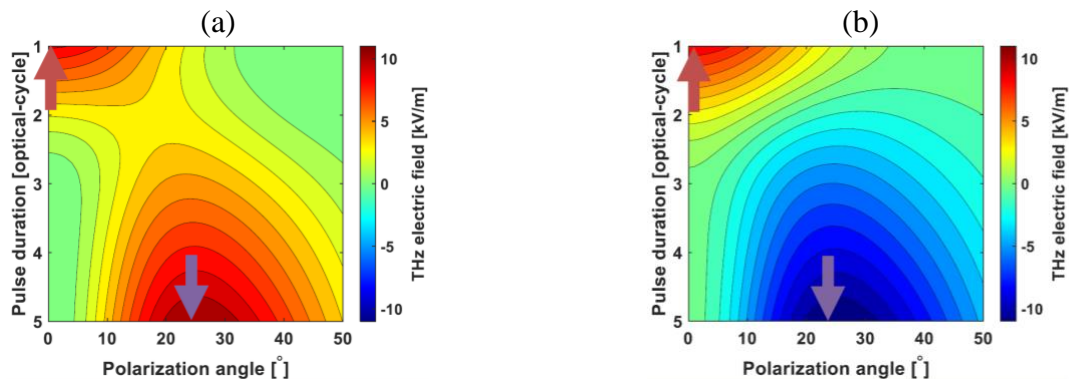


Fig 2. The THz pulse peak power in the function of the pulse duration and the polarization angle in case of a.) $+\pi/2$ rad and b.) $-\pi/2$ rad relative phase. The central wavelength of the driving laser is 3200 nm.

In the case of $+\pi/2$ rad relative phase (see Fig. 2. a), there are two regions, where efficient THz pulse generation is realized. The first region is the conventional region, where the two-color scheme is the more effective process. This region can be seen in the bottom-middle (blue arrow) on Fig. 2. a. The second region is the unconventional region, where the one-color scheme is the more effective process. This region can be seen in the top-left (red arrow) on Fig. 2. a. The conventional and the unconventional region also can be observed in the case of $-\pi/2$ rad relative phase (see Fig. 2. b). However, the sign of the conventional region is inverted in this case as one would expect.

Comparing the two cases one can see, there are three regions with different behaviors. The first is the unconventional region, where the single-color THz pulse generation is more efficient. The second is the conventional region, where the double-color THz pulse generation is more efficient and furthermore the THz pulse generation are not sensitive on the sign of the relative phase. The third and final is the semi-conventional region, where the double-color THz pulse generation is more effective and however the THz pulse generation are sensitive on the sign of the relative phase. This region is between the conventional and unconventional regions.

This behavior is mostly similar to all wavelengths of the studied spectral range. Single-color driving laser pulses are more efficient below two optical cycles. The upper limit of the unconventional region is 1.9 cycles (~ 16 fs) at 2500 nm and 1.6 cycles (~ 21 fs) at 4000 nm. The conventional region starts above three cycles. More precisely 3.2 cycles (~ 27 fs) at 2500 nm and 3.5 cycles (~ 47 fs) at 4000 nm.

(a)

(b)

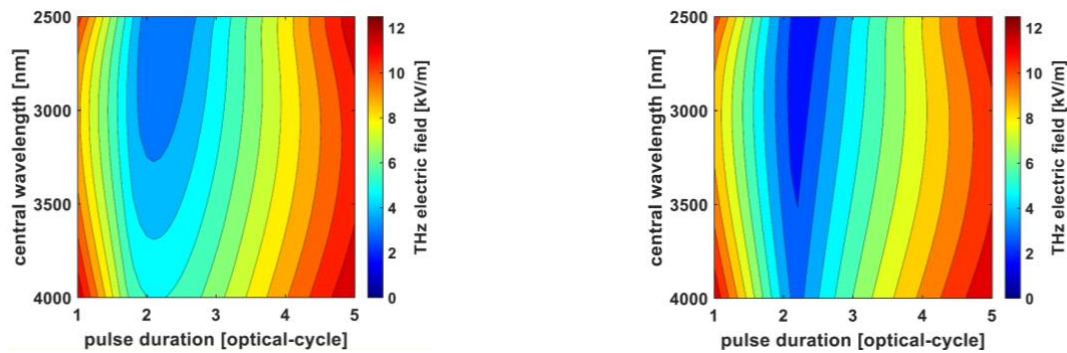


Fig. 3. Numerical results of THz generation (2500-4000 nm) a.) $+\pi/2$ rad and b.) $-\pi/2$ rad relative phase.

3. Summary

In summary, we have investigated the THz pulse generation with one- and two-color pulses in the MIR spectral range. In the numerical simulations the pulse duration changed from 1.0 optical cycles (10.67 fs) to 5.0 optical cycles (53.33 fs). We have found that in the case one-color method the THz pulse spectral components are increasing with decreasing pulse duration, while in the case of two-color method the THz pulse spectral components are decreasing with decreasing pulse duration. If the pulse duration is shorter than 1.5 optical cycles then the one-color method is more efficient, else the two-color method is more efficient.

Acknowledgement

The ELI-ALPS project (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) is supported by the European Union and co-financed by the European Regional Development Fund. The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-“Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems.”

References

- [1] D. J. Cook et al. Optics Letters **25**(16), 1210-1212 (2000)
<https://doi.org/10.1364/OL.25.001210>
- [2] Y. Watanabe et al. Opt. Comm. **234**, 125-129 (2004)
<https://doi.org/10.1016/j.optcom.2004.02.032>
- [3] J. Dai et al. App. Phys. Lett. **94**(2), 021117 (2009)
<https://doi.org/10.1063/1.3068501>
- [4] N. Thiré et al. Opt. Exp. **25**(2) 1505-1514 (2017)
<https://doi.org/10.1364/OE.25.001505>
- [5] N. Thiré et al. Opt. Exp. **26**(21) 26907-26915 (2018)
<https://doi.org/10.1364/OE.26.026907>
- [6] <http://www.eli-alps.hu>

SIZE REDUCTION OF DRUG PARTICLES BY PULSED LASER ABLATION TECHNIQUE

Tamás Gera^{1*}, Eszter Nagy¹, Tamás Smausz¹, Zsolt Homik¹, Judit Kopniczky¹, Judit Budai¹, Tibor Ajtai¹, Rita Ambrus², Piroska Szabó-Révész², Béla Hopp^{1,3}

¹*Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged,
6720 Szeged, Dóm square 9, Hungary*

²*Institute of Pharmaceutical Technology and Regulatory Affairs, University of Szeged,
6720 Szeged, Eötvös utca 6, Hungary*

³*Department of Materials Science, Interdisciplinary Excellence Centre, University of Szeged,
6720 Szeged, Dugonics tér 13, Hungary*

**e-mail: gertamc2@gmail.com*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.11>

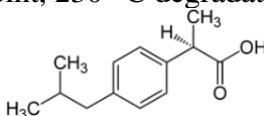
1. Introduction

Most of Non-Steroidal Anti-Inflammatory Drugs (NSAIDs) used in medication have poor water solubility and relatively low bioavailability. Many ongoing investigations aim to enhance the dissolution rate and solubility of these drugs and thereby reducing the required doses and diminishing the risk of side effects. To produce micro- or nanoparticles one of the most popular and efficient method is particle size reduction. [1] This method allows us to raise the specific surface of the particles which leads to advanced dissolution rate. For nanoparticle generation pulsed laser ablation (PLA) is an accepted and popular approach in case of both inorganic and organic materials. [2] Our former investigations have shown that PLAL/PLD is a proper technique for the size reduction of pharmaceutical particles without causing any chemical decomposition. [3-5] In this work we selected three NSAIDs as targets (ibuprofen, niflumic acid and meloxicam) with similar solubility, dissociation constant, particle size and crystallinity but with different chemical structures. We studied the effect of high-energy pulsed laser beam on the chemical degradation and the size distribution of the ablated drug particles. These model medicines are frequently used in acute pain therapy where fast absorption through the gastric mucosa is an essential requirement. The solubility of these pharmaceuticals is very poor in the gastric juice (pH=1.2) since they have a weak acidic character. However, ablated particles dissolve faster and can provide rapid analgesic effect. Our goal was to investigate the legitimacy of the PLA method using three different laser wavelengths (248 nm; 532 nm; 1064 nm) for particle size reduction in ambient gas at standard pressure. We intended to produce submicron-sized drug particles, which may form the basis of a new type of pulmonary drug formulation for the rapid and efficient therapy of the hard-to-reach alveolar region of the lung. [6]

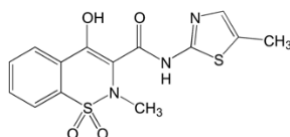
2. Experimental

We used commercially available pharmaceutical powders for producing target tablets by a hydraulic compactor at 175 MPa pressure:

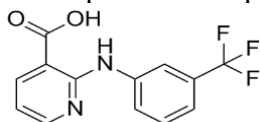
Ibuprofen (α -Methyl-4-(isobutyl) phenylacetic acid): white color, particle size of 15.3 μm (d(0.5)), 75-77 °C melting point, 157 °C boiling point, 230 °C degradation temperature;



Meloxicam (4-hydroxy-2-methyl-N-(5-methyl-2-thiazolyl)-2H-benzothiazine-3-carboxamide-1,1-dioxide): yellow color, particle size of 3.78 μm (d(0.5)), 100% crystalline, 254 °C melting/decomposition temperature;



Niflumic acid (2-[3-(trifluoromethyl)phenyl] amino] -3-pyridinecarboxylic acid, white color, 18.85 μm (d(0.5)) particle size, 203 °C melting/decomposition temperature.



We investigated the optical absorption coefficient of these three pharmaceuticals by ellipsometry (Fig. 1). It can be seen that they have very diverse optical properties at the used wavelengths.

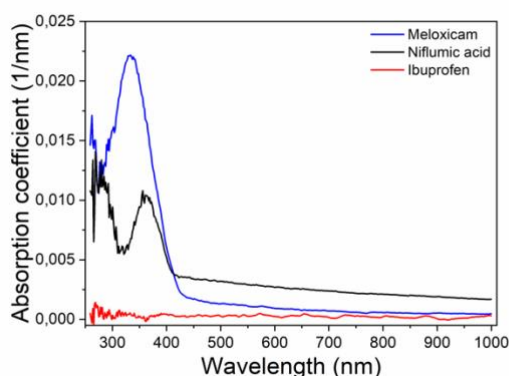


Figure 1. Absorption coefficients of ibuprofen (red), niflumic acid (black), and meloxicam (blue)

We irradiated the targets with high-energy ($1.5\text{--}15\text{ Jcm}^{-2}$) nanosecond laser impulses in N₂ ambient gas at standard pressure using the following laser types: KrF excimer laser (FWHM=18 ns, $\lambda=248\text{ nm}$, 10 Hz repetition rate) and Nd:YAG laser (FWHM=6 ns, $\lambda=532/1064\text{ nm}$, 10 Hz repetition rate). The laser beam was focused on the target surface at a grazing angle of 45° by focusing lenses. We created a N₂ gas flow along the chamber at constant flow rate (2 lmin^{-1}). The ablated particles were collected for FTIR analysis on a filter (pore size 1 μm , Merck Millipore Ltd. Omnipore Membrane Filter) (Fig. 2).

We have also investigated the size distribution of the generated particles by Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) by using the same experimental setup as it can be seen in Figure 2.

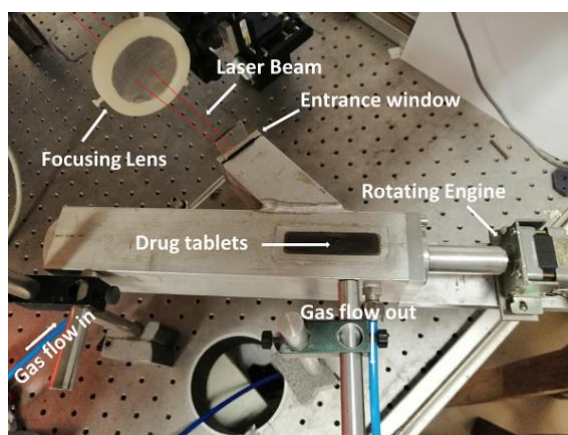


Figure 2. Experimental setup for PLA of drug pellets.

Moreover, we set up a generally applied pump and probe system (Fig. 3) for studying the material removal process. The pump laser was the above mentioned Nd:YAG laser and as a

probe laser we implemented different nitrogen laser induced dye lasers adapting to the ablating wavelengths.

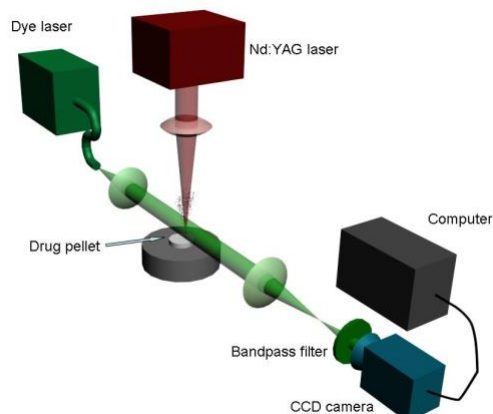


Figure 3. Time-resolved investigation of the particle ejections during PLA.

3. Results and discussions

3.1 FTIR Spectroscopy for chemical characterization

FTIR spectra of the ablated particles can be seen in Figure 4. It is observable that the ablation with UV (248 nm) laser beam resulted in destroyed particles while with visible (VIS) (532 nm) and IR (1064 nm) wavelengths chemically intact particles could be produced in the case of all three drugs. For further investigations we used only VIS and IR wavelengths since we intended to avoid chemical decomposition of the drugs.

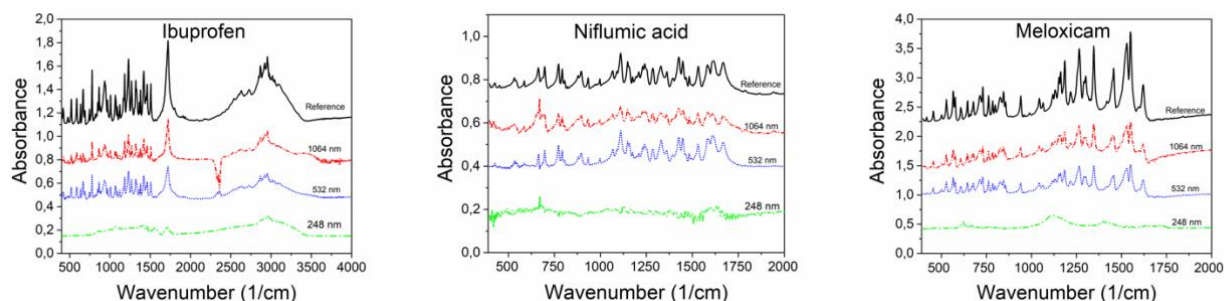


Figure 4. FTIR spectra of ablated drug particles in case of ibuprofen, niflumic acid and meloxicam

3.2 Particle size characterization by SMPS measurements

We investigated the particle size distributions of the ablated products produced at various experimental parameters. The ibuprofen particles were the smallest with having mode values smaller than 100 nm in all size distributions. It is followed by niflumic acid and then meloxicam with ≥ 100 nm and ~ 200 nm mode values, respectively. We concluded that no clear dependence on the laser fluence can be established.

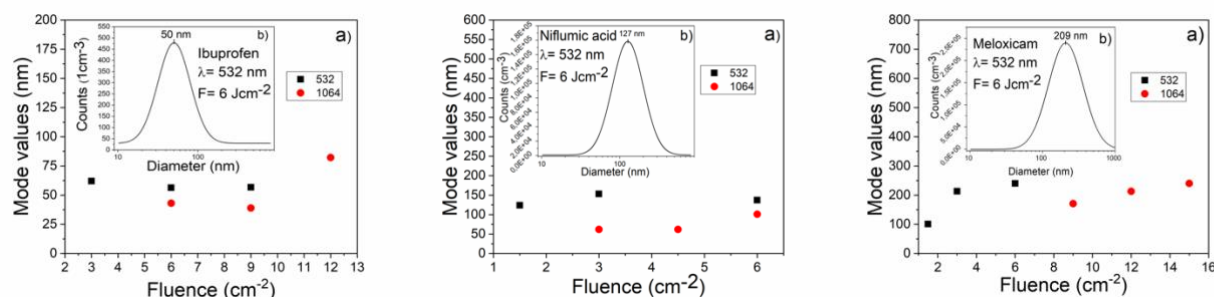


Figure 5. Particle-size measurements of ablated drug particles (ibuprofen, niflumic acid and meloxicam).

a) Mode values of the particle size distributions at various laser fluences; b) Particle size distributions at 532 nm laser wavelength and 6 Jcm⁻² fluence.

We calculated the penetration depth ($d=\alpha^{-1}$) of the laser light and the temperature rise in the target drug for VIS and IR laser impulses using the modified Beer-Lambert law (equation 1):

$$\Delta T(x) = \frac{\alpha * F}{\rho * c} * e^{-\alpha x} \quad (1),$$

where α is the wavelength dependent absorption coefficient, x is the distance from the surface, F is the applied fluence of the laser beam, ρ is the density and c is the specific heat of the target material. Our calculations show that the temperatures inside the irradiated volume elements exceed well above 10³ K which means that the chemically intact particles cannot originate from these irradiated volumes. This indicates that these particles have to originate from the secondary effects of the ablation e.g. photomechanical effects.

3.3 Time-resolved investigation of the particle ejections

To understand and represent the dynamics of particle generation we captured fast photography images at different stages of the ablation process (Fig. 6) using VIS laser wavelength and 6 Jcm⁻² laser pulses. The ablation mechanism was similar for all three drugs. The laser beam induced micro-explosions at the target surface triggers the formation of shock waves. The produced shock wave is followed by an expanding cloud of matter in non-condensed state. Due to the recoil forces solid particles increasing in size with time start to exit the surface. We could not detect any particles larger than 1 μ m with SMPS although it can be clearly seen that particles in all sizes were ablated. It can be related to the mass dependence of the mean free path and the limitation of the sizes of transportable particles by the magnitude of gas flow.

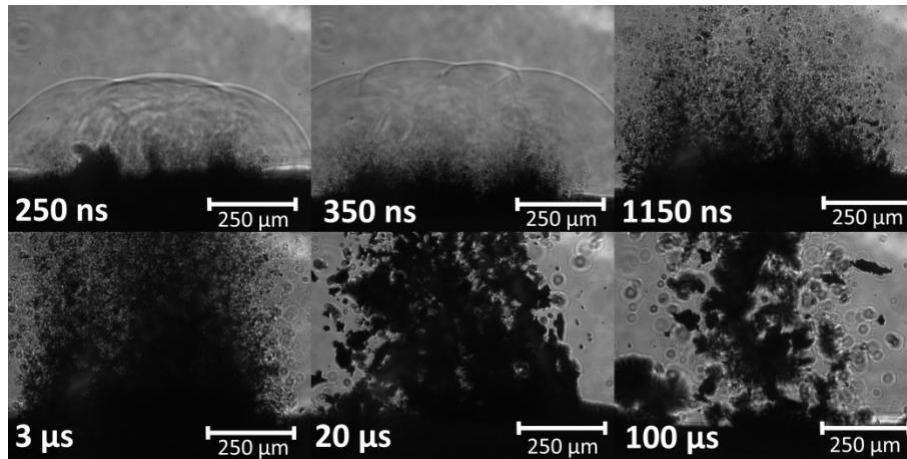


Figure 6. Time-resolved investigation of particle ejection in case of Niflumic acid using 532 nm laser wavelength and 6 Jcm⁻² fluence.

We also estimated the magnitude of photomechanical effects by calculating (equation 2) the initial pressure produced at the shock front.

$$P = \frac{2}{\gamma+1} * \rho * v^2 \quad (2),$$

where P is the pressure produced at the shock front, ρ is the density of the medium, v is the velocity of the shock front and γ is the proportion of specific heats (c_p/c_v) of the medium. The initial pressures at the shock fronts are closely equivalent with the recoil pressure of the shock wave what have 70-350 atm values. It verifies our assumption, that the photomechanical effects have a meaningful role in the ablation process of porous materials.

4. CONCLUSIONS

We can state that PLA is a promising method for the size-reduction of ibuprofen, niflumic acid and meloxicam. By the selection of the laser parameters submicron to nanometer size particle managed to be generated, lowering the initial sizes of the drugs with orders of magnitude. Only VIS and IR laser wavelengths are suitable for producing chemically preserved molecules. The valuable nano- and submicron sized particles originate from the secondary photomechanical effects of the ablation.

We conclude that PLA can offer a chemical-free, reproducible and rather simple approach for the size reduction of the investigated NSAIDs. The produced submicron size particles can be beneficiate for the development of new pulmonary drug formulations for the medication of the lower lung area in pneumonia or severe acute respiratory syndrome. PLA can be advantageous over other generally applied practices by the adaptable laser parameters with the tuning of the grinding mechanism.

5. ACKNOWLEDGEMENTS

The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund (EFOP-3.6.2-16-2017-00005); the Ministry of Human Capacities, Hungary grant (TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP program). T. Ajtai is indebted for his János Bolyai Research Scholarship of the Hungarian Academy of Sciences.

[1] Shegokar, R. & Müller, R. H. Nanocrystals: Industrially feasible multifunctional formulation technology for poorly soluble actives. *Int. J. Pharm.* **399**, 129–139 (2010).
<https://doi.org/10.1016/j.ijpharm.2010.07.044>

[2] Mele, A., Giardini-Guidoni, A. & Teghil, R. Laser ablation of inorganic and organic materials. *J. Chem. Sci.* **105**, 715–733 (1993).
<https://doi.org/10.1007/BF03040845>

[3] Hopp, B. et al. Production of meloxicam suspension using pulsed laser ablation in liquid (PLAL) technique. *J. Phys. D. Appl. Phys.* **51**, 2018
<https://doi.org/10.1088/1361-6463/aab4be>

[4] Gera, T. *et al.* Production of ibuprofen in crystalline and amorphous forms by Pulsed Laser Deposition (PLD). *Appl. Surf. Sci.* **493**, 359–367, 2019
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2019.06.254>

[5] Ambrus, R. et al. Application of a suitable particle engineering technique by pulsed laser ablation in liquid (PLAL) to modify the physicochemical properties of poorly soluble drugs. *J. Drug Deliv. Sci. Technol.* **57**, 101727, 2020
<https://doi.org/10.1016/j.jddst.2020.101727>

[6] Szabó-Révész, P. Modifying the physicochemical properties of NSAIDs for nasal and pulmonary administration. *Drug Discov. Today Technol.* **27**, 87–93 2018
<https://doi.org/10.1016/j.ddtec.2018.03.002>

A MAGASFELHARMONIKUS-KELTÉS KVANTUMOPTIKAI VONATKOZÁSAI

Gombkötő Ákos¹, Varró Sándor^{2,3}, Keresztes Zoltán¹, Gábor Bence¹, Földi Péter^{1,2}

¹*Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, Tisza L. krt. 84-86, 6720 Szeged*

²*ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Kft., Wolfgang Sandner utca 3, 6728 Szeged*

³*Wigner Fizikai Kutatóközpont, Konkoly-Thege M. út 29-33, 1121 Budapest*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.12>

1. Bevezetés

Nagyintenzitású elektromágneses terek esetén a magas fotonszám miatt nem szokás a mező kvantált, azaz a fotonképet alkalmazó leírását alkalmazni. Ugyanakkor a magasfelharmonikus-keltés folyamata során a jelenség alacsony hatékonysága miatt a felharmonikusok a gerjesztésnél már sokkal kisebb intenzitásúak, így ilyenkor még a szokásos ökölszabály szerint is hasznos a felharmonikus módusok kvantumoptikai leírása. Emellett, érdekes módon, kísérleti eredmények utalnak arra, hogy maga az erős gerjesztő tér is rendelkezik olyan tulajdonságokkal, amelyek csak ilyen módon értelmezhetők [1,2]. Lényegében arról van szó, hogy az anyagi rendszerrel történő kölcsönhatás után a gerjesztő tér és a felharmonikusok együttes fotonszámeloszlásában a felharmonikus spektrumra emlékeztető struktúra fedezhető fel. Ez a tapasztalat mutatja, hogy még ebben az intenzitástartományban is vannak olyan effektusok, amelyek a kölcsönhatás teljesen kvantumos leírását igénylik.

Erős terekkel kapcsolatban – néhány fontos korai eredménytől [3,4] eltekintve – az elméleti leírás eléggé hiányos, jelenleg is folyó kutatásaink ezt a hiányt igyekeznek betölteni

2. Modell

A magasfelharmonikus-keltés folyamatának leírásához három fizikai rendszert kell jellemeznünk: a tipikusan az infravörös tartományba eső gerjesztést, a vele kölcsönható anyagi rendszert, illetve a másodlagos sugárzást, ami az UV frekvenciákig elérő felharmonikusokat is tartalmazza. Ez azt jelenti, hogy a teljes rendszert a következő Hamilton-operátor írja le:

$$H = H_e + H_m + H_{HH} + V_{e-m} + V_{HH-m}, \quad (1)$$

ahol az egyes tagok a gerjesztést (excitation), az anyagi rendszert (matter), a felharmonikusokat (HH: high-order harmonics), a gerjesztés és az anyagi rendszer kölcsönhatását, valamint a felharmonikusok és az anyag kölcsönhatását jelentik (ebben a sorrendben). Kvantumos leírás esetében a szabad tereket leíró H_e és H_{HH} Hamilton-operátorok $H_{field} = \sum \hbar \omega_n (a_n^\dagger a_n + 1/2)$ alakúak, ahol a szumma a figyelembe vett módusokon fut végig. Ez elvben az összes populált módot jelenti, de a modell (esetlegesen numerikus) megoldhatósága érdekében elképzelhető, hogy csak kevesebb módot tudunk figyelembe venni. A kvalitatív kép szempontjából pl. a gerjesztést elegendő olyan monokromatikus sugárzásnak tekinteni, ahol az összeg egyetlen tagot tartalmaz. A kölcsönhatási operátorok (V_{e-m} és V_{HH-m}) esetén dipólközelítést alkalmazunk. Hosszmértékben $V = -\mathbf{D}\mathbf{E}$ formába írható, ahol \mathbf{D} az anyagi rendszer dipólmomentumának megfelelő operátor, \mathbf{E} pedig az elektromos tér. Ez utóbbi nem feltétlenül szükséges, hogy maga is operátor legyen, erős gerjesztés esetén tekinthetjük klasszikus időfüggő mezőnek. Ez azért érdekes, mert jelenleg még erősen leegyszerűsített modellek esetén is igen összetett probléma a teljesen kvantumos leírás kezelése. A

továbbiakban azokat az eredményeinket ismertetjük, amelyek a kölcsönhatásban résztvevő három rendszer közül kettőnek a kvantumos leírásából adódnak.

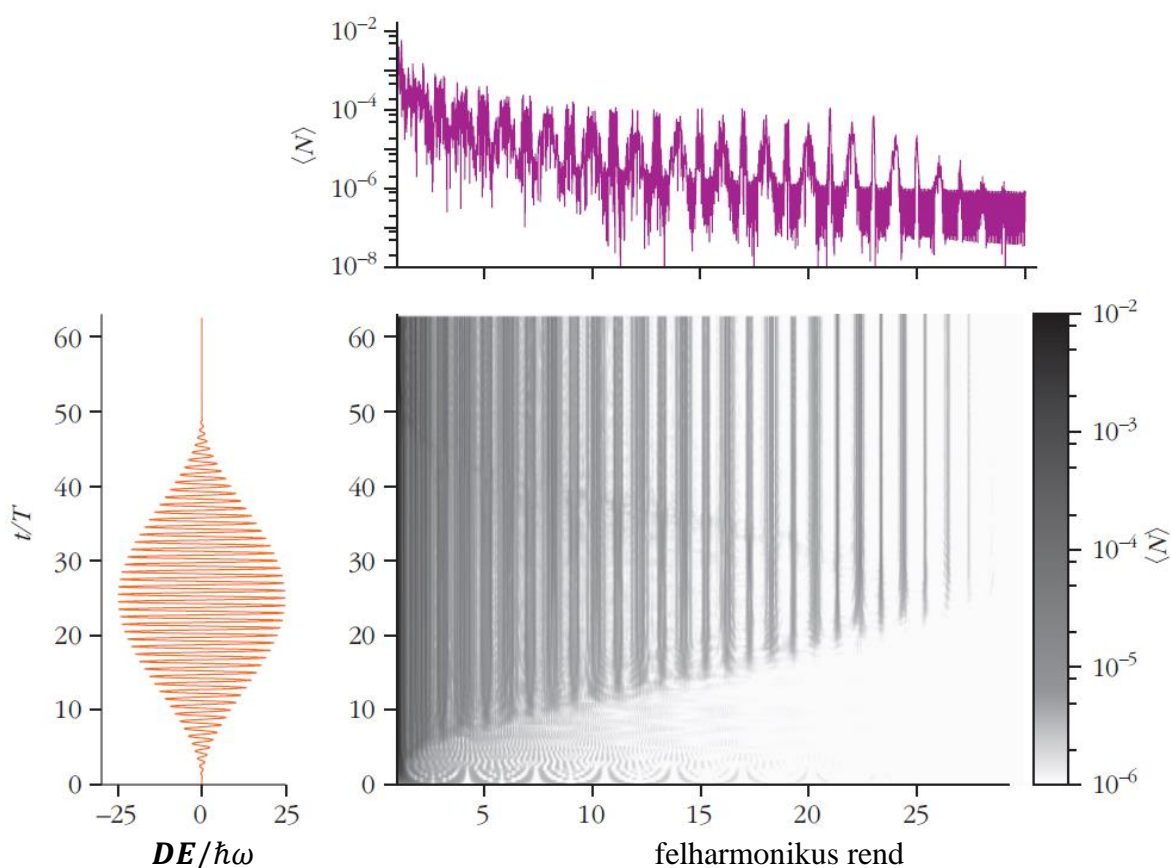
3. Kvantált felharmonikusok, kétállapotú atom és klasszikus gerjesztés

Első modellünkben [5,6] a felharmonikusokat kvantumosan írjuk le, a gerjesztés pedig klasszikus, azaz H_e hiányzik az (1) egyenletből, továbbá

$$V_{e-m} = -\mathbf{D}\mathbf{E}_e = f(t)\cos(\omega t)(\sigma_x E_0),$$

$$H_m = \hbar\omega_0\sigma_z,$$

ahol a kétnívós közelítésnek megfelelően a Pauli-mátrixok jelennek meg, az $f(t)$ burkolófüggvény pedig lassan változik a $T = 2\pi/\omega$ periódusidőhöz képest. Eredményeink alapján ekkor egy adott felharmonikus jelenléte vagy hiánya alig észrevehetően befolyásolja a többi dinamikáját, azaz a HH módusok lényegében függetlenek. Így minden egyes ilyen módus időfejlődését jó közelítéssel kiszámíthatjuk, ha azt a Hamilton-operátort tekintjük, amelyben H_{HH} pusztán az adott módot tartalmazza. Ezen a módon több ezer frekvencia esetén is meghatározhatjuk a dinamikát, beleértve azokat is, amelyek nem egész számú többszörösei ω -nak. Így kaptuk az 1. ábrát.



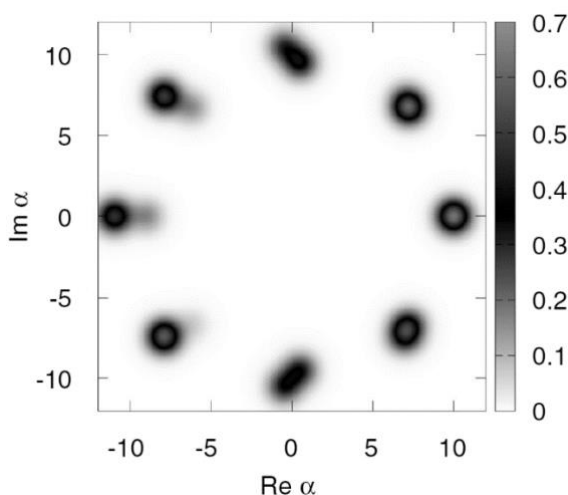
1. ábra: A központi panelen a fotonszámok várható értéke látható az ω egységekben mért frekvencia és az idő függvényében ($T = 2\pi/\omega$). Bal oldalon a gerjesztő impulzus térerősségének időfüggése látható dimenziótlán egységekben. A felső ábra a fotonszámok gerjesztés utáni várható értékét mutatja [6].

Ezen az ábrán látszik, hogy a kezdetben nulla fotonszám várható értékkel jellemzett módusok hogyan populálódnak az idő előrehaladtával, és hogyan alakul ki a HHG spektrum. A jól ismert kísérleti eredményekkel kvalitatív egyezésben azt kapjuk, hogy ω egész számú többszöröseihez közel jelennek meg észrevehető maximumok a fotonszám várható értékekben, látható egy „plató” a spektrumban, illetve a harmonikus csúcsok egy idő után eltűnnek („levágás”). Mindez azt mutatja, hogy már a lehető legegyszerűbb anyagi modell (a kétállapotú atom) is alkalmas arra, hogy a magasfelharmonikus-keltés folyamatáról kvalitatívan helyes képet adjon. Emellett az is látható, hogy a spektrum szerkezetében kvalitatív különbség van a páratlan és páros felharmonikusok között, ezt a szerkezetet a modell közelítésein belül analitikusan meg tudjuk magyarázni. A felharmonikusokra vonatkozó független-módus közelítésen belül feltérképeztük a magas felharmonikusok koherencia tulajdonságait is [5], megmutattuk, hogy több nemklasszikus tulajdonság (préseltség, szub-poissoni fotonstatisztika) jelen van a felharmonikus sugárzásban, jellemzően a páros felharmonikusok esetén. Általában ezek a jellemzők az egyatomos anyagi rendszer esetében kevésbé térnek el a klasszikus határesetétől. Ugyanakkor a fotonszám-keresztkorreláció vizsgálata közben jelentős antikorrrelációt sikerült kimutatni a páros-páratlan felharmonikusok között.

Előzetes eredményeink szerint az egyatomos spektrum szerkezete lényegében megegyezik az N -darab koherensen gerjesztett kétszintes atom (Dicke-modell) kollektív sugárzási spektrumával.

4. Kvantált gerjesztés és kétállapotú atom

Az előző fejezet eredményei mutatják, hogy a felharmonikus módusok jelenléte – fizikailag a keltési folyamat alacsony hatékonysága miatt – nem befolyásolja számottevően az anyagi rendszer és a gerjesztő módus csatolt dinamikáját. Mivel a kísérleti eredmények a kölcsönhatás után a gerjesztés fotonstatisztikájára, a „hiányzó fotonokra” vonatkoznak [1,2], érdemes a gerjesztést kvantumosan kezelni, miközben a fentiek alapján (és a számítások megkönnyítése érdekében) a felharmonikusok jelenlétét elhanyagoljuk [7,8]. Ha a gerjesztő módus kezdetben koherens állapotban van, akkor a dinamika folyamán ez az állapot több, szintén koherens részre esik szét. Kicsit részletesebben, arról van szó, hogy a kölcsönhatás során kvantumos összefonódottság épül fel a gerjesztő módus állapota és a kölcsönhatást leíró dipólmomentum operátor sajátállapotai között. Az összefonódott állapot egyes tagjaihoz különböző dinamika tartozik, más utakat járnak be a fázistéren. A lenti ábra a kétállapotú atom esetére (amikor $D_x = \sigma_x$, összesen két sajátállapottal) mutatja ezt a jelenséget a Wigner-függvény segítségével.



2. ábra: A gerjesztő módus Wigner-függvényének időfejlődése. A nyolc, jól elkülöníthető rész különböző időpillanatokhoz tartozik az első optikai ciklusban: $t = 0$; $t=1/8T$; $t=2/8T$, ..., $t=7/8T$. A módus kezdőállapota egy $\alpha = 10$ indexű koherens állapot, míg az atom $t = 0$ -ban alapállapotban van. A kölcsönhatás erősségét jellemző Rabi-frekvencia az atomi rezonanciafrekvencia fele, a gerjesztés pedig távol van a rezonanciától: $\omega/\omega_0 = 3$ [8].

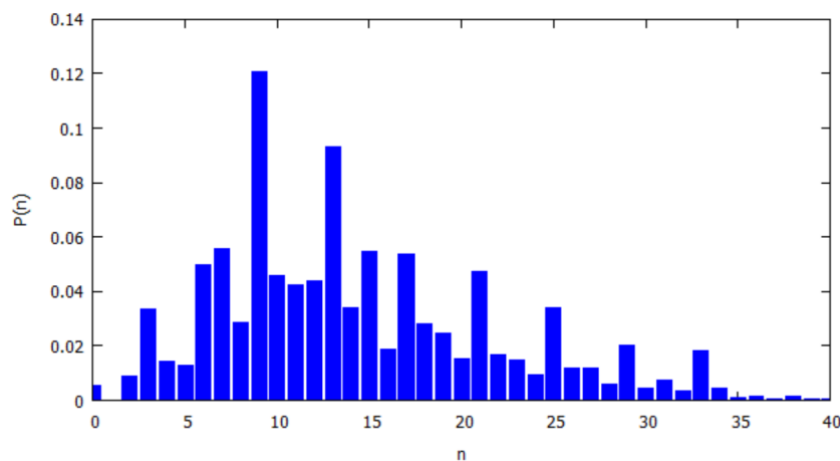
A folyamat során – nagyon jó közelítéssel – az történik, hogy az anyagot leíró Hamilton operátor gyors átmeneteket indukál az összefonódott állapot részei között, és ezek az átmenetek azok, amelyek a felharmonikusok létrejöttéért felelősek. Másszóval ahhoz, hogy a felharmonikusok megjelenjenek, mindenképpen szükség van a szabad anyagi rendszert leíró H_m operátorra is.

5. Kvantált gerjesztés és kvantált felharmonikusok

Az (1) egyenletben nem szerepel közvetlen kölcsönhatás a gerjesztés és a HH módusok között. Az anyagi rendszer az, ami csatolást hoz létre az elektromágneses terek között. Ezt a legtisztábban úgy tanulmányozhatjuk, ha bevezetünk egy olyan Hamilton-operátort, amelyben az anyag csak magasrendű szuszceptibilitás jellegű paramétereken keresztül jelenik meg:

$$H_{g-HH} = H_g + H_{HH} + \sum_m \chi^{(m)} [a_g^m a_m^\dagger + (a_g^\dagger)^m a_m], \quad (2)$$

ahol a keltő és eltüntető operátorok g indexe a gerjesztésre vonatkozik, m pedig azt a HH módot jelenti, amely frekvenciája a gerjesztésének az m -szerese: $\omega_m = m\omega$. Hasonló Hamilton-operátort egyetlen taggal a szummában ($m=2$) a másodharmonikus-keltés, illetve a vele ellentétes folyamat, a parametrikus lekonverzió leírására szokás használni [9]. A (2) Hamilton-operátor által generált dinamika esetén könnyen tudunk az egyes módusok fotonszámaiból megmaradó mennyiséget konstruálni (az említett $m=2$ speciális esetben pl. $N = N_g + 2N_2$ felcserélhető H_{g-HH} -val), ami azt mutatja, hogy ezzel a módszerrel valóban pusztán a felharmonikus-keltés jelenségére tudunk koncentrálni. A részletek természetesen a $\chi^{(m)}$ mennyiségek egymáshoz viszonyított nagyságában és relatív fázisaikban rejlenek. Az utóbbiakról – a teljes dinamika megoldása, majd pusztán a módusok állapotterére történő redukálása nélkül – keveset mondhatunk. Ugyanakkor, mivel a tipikus harmonikus spektrumok ismertek, a magasrendű szuszceptibilitások abszolút értékeit megválaszthatjuk úgy, hogy számításaink visszaadják ezeknek a spektrumoknak az 1. ábra felső részén is látható tulajdonságait. Előzetes eredményeink szerint, pusztán néhány módus figyelembe vételével is igen érdekes, strukturált fotonszám-eloszlásokat kaphatunk. Erre mutat példát a 3. ábra.



3. ábra: A (2) Hamilton-operátor által generált dinamika 2,5 optikai ciklus utáni eredménye az $m=2, 3, 4$ és 5 HH módusok figyelembe vételével. Az ábrán a négy HH módus együttes fotonszámeloszlását láthatjuk. A $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, $\chi^{(4)}$ és $\chi^{(5)}$ mennyiségek valóságosak, nagyságukat úgy választottuk meg, hogy a kísérleti spektrumokban megjelenő „platónak” megfelelően a fotonszámok várható értéke azonos legyen ezekben a módusokban.

A (2) egyenlet után említett fotonszám megmaradási tulajdonság azt is jelenti, hogy a fenti ábra struktúrája megjelenik a gerjesztésből „hiányzó” fotonok eloszlásában is, ami a kísérletekkel közvetlenül összehasonlítható eredmény.

6. Összefoglalás

A fentiekben azt a munkát foglaltuk össze, amelyet a magasfelharmonikus-keltés kvantumoptikai leírása kapcsán végeztünk [5-8]. Megmutattuk, hogy a folyamatban résztvevő gerjesztés, anyagi rendszer és a másodlagos sugárzás hármából bármelyik kettőt kvantáltan kezelve érdekes eredmények adódnak. Ennek fényében további munkánk célja a teljes folyamat kvantumos leírása.

Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben.**

Munkánkat támogatták továbbá TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok. Magát az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja.

Irodalom

- [1] N. Tsatrafyllis, I. K. Kominis, I. A. Gonoskov, P. Tzallas, Nat. Comm. **8**, 15170 (2017).
<https://doi.org/10.1038/ncomms15170>
- [2] N. Tsatrafyllis, S. Kühn, M. Dumergue, P. Földi, S. Kahaly, E. Cormier, I. A. Gonoskov, B. Kiss, K. Varjú, S. Varró, P. Tzallas, Phys. Rev. Lett. **122**, 193602 (2019).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.193602>
- [3] J. Bergou, S. Varró, J. Phys. A: Math. Gen. **14**, 1469 (1981).
<https://doi.org/10.1088/0305-4470/14/6/023>
- [4] J. Bergou, S. Varró, J. Phys. A: Math. Gen. **14**, 2281 (1981).
<https://doi.org/10.1088/0305-4470/14/9/023>
- [5] A. Gombkötő, A. Czirják, S. Varró, P. Földi, Phys. Rev. A **94**, 013853 (2016).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.013853>
- [6] P. Földi, Fizikai Szemle **67**, 345 (2017).
- [7] Á. Gombkötő, S. Varró, P. Mati, P. Földi, Phys. Rev. A **101**, 013418 (2020).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.101.013418>
- [8] Á. Gombkötő, S. Varró, P. Mati, P. Földi, Fizikai Szemle **70**, 163 (2020).
- [9] T. Toyoda and K. Wildermuth, Phys. Rev. D **22**, 2391 (1980).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevD.22.2391>
- [10] P. Meystre, M. Sargent III, Elements of Quantum Optics (Springer, 2007.)
<https://doi.org/10.1007/978-3-540-74211-1>

EGY-CIKLUSÚ, KÖZELI INFRAVÖRÖS LÉZERIMPULZUSSAL VEZÉRELT ALAGUTAZÁSOS IONIZÁCIÓ FÁZISTERES VIZSGÁLATA

Hack Szabolcs¹, Majorosi Szilárd², Benedict Mihály², Varró Sándor^{1,3} és Czirják Attila^{1,2}

¹ELI-ALPS, Szeged, Magyarország

²Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, Szeged, Magyarország

³Wigner Fizikai Kutatóközpont, Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet, Budapest, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.13>

1. Bevezetés

Az atomok erős lézertérben történő ionizációja alapvető szerepet játszik az attoszekundumos fizikában [1]: egy elegendően nagy intenzitású lézerimpulzus hatására az elektron atomi kötött állapotából (általában alagutazással) a kontinuumba távozik. Ez a rendkívül sikeres „három-lépéses modell” első lépése, amely a magas rendű harmonikus keltés és számos attoszekundumos mérés és eljárás elméleti alapja. Jelenleg az alagutazási idő [2] és az alagútból való kilépést jellemző impulzus az alagutazásos ionizáció alapvető fontosságú problémái, mind a kvantumelmélet, mind az attoszekundumos fizikában jellemző kísérleti eredmények értelmezése szempontjából. Az elmúlt években több csoport publikált releváns kísérleti eredményeket [3-7], általában az „attoclock” módszerrel. Bár ezeknek a méréseknek az értelmezése általában nehéz, és vannak ellentmondások is, a cirkulárisan polarizált lézerimpulzussal atomi hidrogén esetén kapott legújabb mérési eredmények [7] megegyeznek látszólag a korábbi elméleti eredménnyel [8,9], miszerint nincs késés a lézerimpulzus csúcsa és az elektronnak az alagút kijáratánál történő megjelenése között.

Kevésbé felderítettek az alagutazásos ionizáció ilyen részletei lineárisan polarizált lézerimpulzus esetén, annak ellenére, hogy ez a legelterjedtebb módszer izolált attoszekundumos impulzusok előállítására: ha a lézerimpulzus elektromos térerőssége csak a fő csúcsot tartalmazó félciklus alatt halad meg egy bizonyos küszöbértéket [10], akkor az alagutazásos ionizáció gyakorlatilag csak ebben a félciklusban lehetséges.

Jelen közleményünkben egyetlen atomnak egy lineárisan polarizált lézerimpulzus hatására történő alagutazásos ionizációját elemezzük a klasszikus fázistéren a Wigner-függvény segítségével. Így a korábbiaknál jobb klasszikus elektronpályákat kaphatunk, amelyek a kvantum-momentum függvényen alapuló kezdő impulzussal indulnak, és nagyon jól egyeznek a későbbi kvantumos időfejlődéssel is. Atomi egységeket használunk.

2. Elméleti modell és numerikus szimulációk

Egy egyszerűsített elméleti modell keretein belül dolgozunk: dipól-közelítést használunk az egyetlen aktív elektronnal rendelkező atom és a klasszikus elektromágneses mező kölcsönhatásának leírására, ún. hossz-mértékben. A közeli infravörös lézerimpulzus elektromos terét szinusz-négyzet burkolóval modellezzük, a lineáris polarizáció iránya a z-tengely:

$$E_z(t) = F \cdot \sin^2\left(\frac{\pi t}{NT}\right) \cos\left(\frac{2\pi t}{T} + \phi\right),$$

itt F a térerősség csúcserőssége, N az impulzus T periódusidejű optikai ciklusainak száma, ϕ pedig a vivő-burkoló fáziskülönbség (CEP). Jelen munkánkban $F = 0.06$, $N = 3$, $T = 110$ (ami kb. 800 nm központi hullámhossznak felel meg) és $\phi = 0$. Ezekkel a paraméterekkel a lézerimpulzus időbeli hossza (intenzitás félértékisétségben) a periódusidő közelében van, azaz közel egy-ciklusú.

Ez a lézerimpulzus gerjeszti a hidrogénatomot, amely kezdetben alapállapotban van. Az elektron hullámfüggvénye mindvégig független marad a z -tengely körüli azimutális szögtől, ezért a háromdimenziós (3D) időfüggő Schrödinger-egyenletet célszerűen henger-koordináta-rendszerben írjuk fel, rögzített atommagot feltételezve:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(z, \rho, t) = \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \right) - \frac{1}{\sqrt{z^2 + \rho^2}} + E_z(t)z \right] \Psi(z, \rho, t)$$

A közelmúltban kifejlesztett algoritmusunk [11] térben és időben negyedrendben pontosan oldja meg numerikusan a fenti egyenletet, a Coulomb-singularitást peremfeltétellel figyelembe véve. A lézerimpulzus csúcsértékét úgy állítottuk be, hogy a Keldysh-paraméter mindvégig 1 alatt maradjon és a csúcs közelében közel 1 legyen, így az alagutazásos ionizáció a teljes impulzus alatt lehetséges legyen, ugyanis ez a releváns a gáz-HHG jelenleg használatos kísérleti technikai szempontjából.

Mivel a lényeges kvantum-dinamika a lézer polarizációs irányában történik, és a fázisteres elemzés 1-dimenzióban (1D) a legkönnyebben áttekinthető, kiszámítjuk az (általában kevert) 1D-re redukált kvantumállapot sűrűségmátrixát a z -tengely mentén a 3D numerikus megoldásból

$$\varrho(z, z', t) = 2\pi \int_0^\infty \Psi^*(z, \rho, t) \Psi(z', \rho, t) \rho d\rho$$

amiből az alábbi definíció szerint számítjuk ki a Wigner-függvényt:

$$W(z, p_z, t) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^\infty \varrho(z + \zeta, z - \zeta, t) \exp(2ip_z \zeta) d\zeta$$

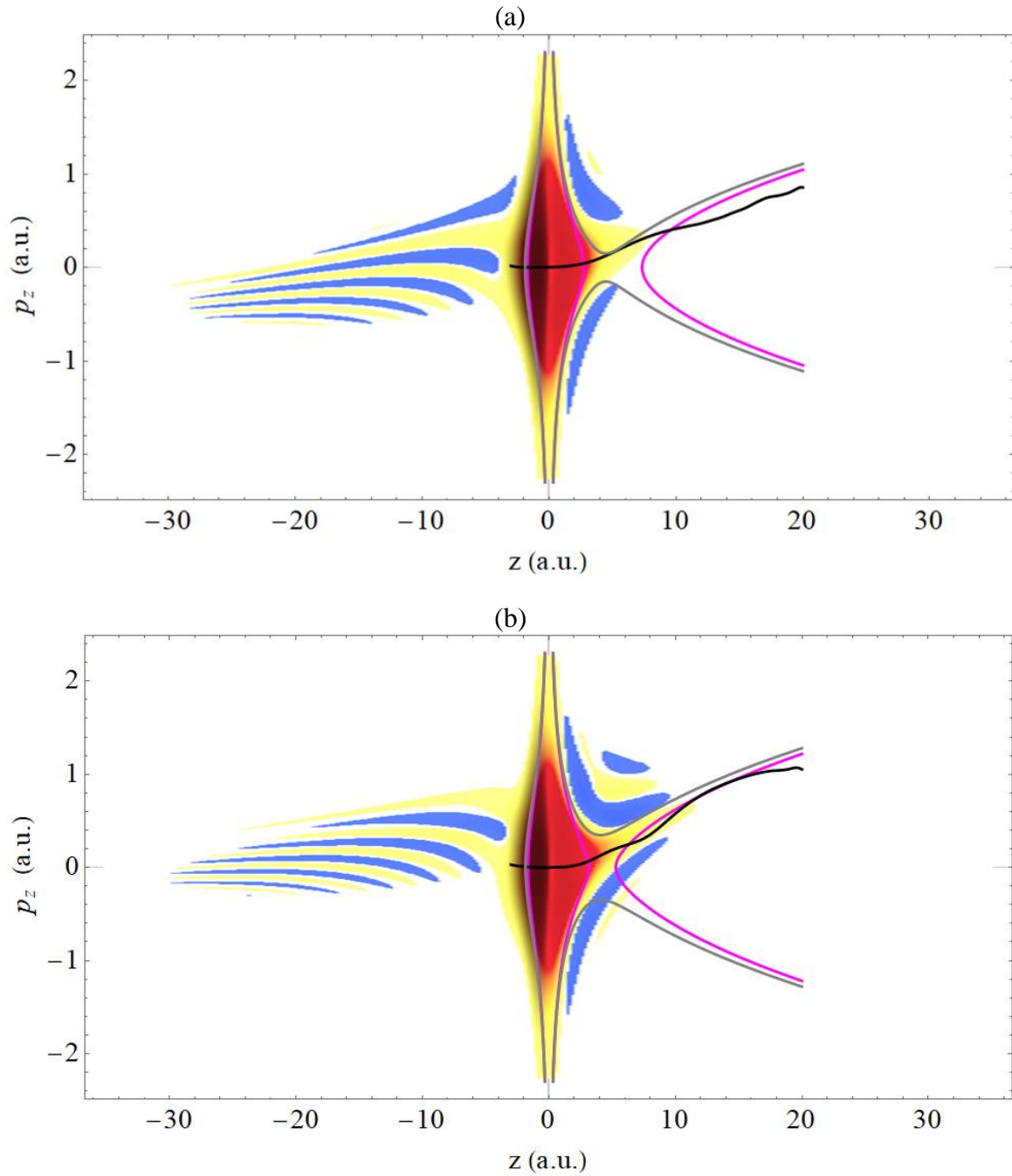
A Wigner-függvényt, negatív értékei és nem-klasszikus mozgásegyenlete miatt, általánosan nem lehet klasszikus fázistér-eloszlásként értelmezni. Azonban a Wigner-függvény alábbi

$$P_n(z, t) = \int_{-\infty}^\infty p_z^n W(z, p_z, t) dp_z$$

momentumai alapján kiszámolhatunk egy helytől függő átlagos impulzus az alábbi definícióval:

$$q(z, t) = \frac{P_1(z, t)}{P_0(z, t)}$$

amelyet általában kvantum-momentum függvénynek szokás nevezni. Ez a fizikai mennyiség, hasonlóan a valószínűségi áramsűrűséghez, nem additív: két kvantumállapot szuperpozíciója esetén az eredő kvantum-momentum függvényben általában interferencia-tagok is fellépnek.



I. ábra

Két pillanatkép a lézerimpulzus hatására a hidrogénatomból kilépő elektron Wigner-függvényéről: (a) 10 atomi időegységgel a lézerimpulzus csúcsa előtt és (b) a lézerimpulzus csúcstétékénél. A Wigner-függvényt a kék-fehér-sárga-vörös színskálával ábráztuk: a kék negatív, a fehér lényegében zéró, majd a sárgától a vörösig növekvő pozitív függvényértéket jelent. A kvantum-momentum függvény a fekete görbe mutatja. A lila görbe egy olyan részecske fázistér-trajektóriája az atommag és a lézertér pillanatnyi eredő potenciáljában, amelynek energiája megegyezik az elektron energiájának pillanatnyi várható értékével. Ugyanebben a potenciálban a szürke görbén mozogva egy olyan részecske, aminek energiája az elektron energia pillanatnyi várható értékének és szórásának összege.

3. Eredmények

Az 1. ábra alapján mutatjuk be, hogyan segíti a Wigner-függvény és a kvantum-momentum függvény a lézerimpulzus hatására bekövetkező ionizációt elemzését. A $z = 0 - 10$ a.u. tartományban a Wigner-függvényben kialakuló, ionizációs folyamatot jelző hullámok ill. „nyúlványok” fő vonulatát jól követi a kvantum-momentum függvény, hasonlóan egy korábbi munkánkhoz [12], az alatta és felette kialakuló oszcillációk pedig kvantum-interferenciát jeleznek. A berajzolt állandó energiájú fázistér-trajektóriák közül a lila színű egyben az alagút tartomány pillanatnyi határát is megadja, a szürke pedig egy olyan mozgáshoz tartozik, amelyik energiája már elég nagy ahhoz, hogy a pillanatnyi potenciálgáton átjutva vezessen ionizációhoz. Utóbbi alakja jól követi a Wigner-függvény kontúrját az alagút tartományában is.

Az energiaviszonyok gondos numerikus elemzése rávilágít arra, hogy lézerimpulzus hatására az elektron energiájának szórása elég nagy lesz ahhoz, hogy a potenciálgát felett átjutva is megnyílik az ionizáció lehetősége, annak ellenére, hogy az energia várható értéke valójában (kis mértékben) csökken a kezdeti állapothoz képest, miközben a lézerimpulzus a fő csúcsához közeledik (összhangban a Stark-effektussal). Tehát, bár látszólag mindvégig az alagutazásos ionizáció tartományban maradnak a paraméterek, valójában a potenciálgát felett ionizációs csatorna is megnyílik. Az alagútnak megfelelő illetve azzal kívülről szomszédos fázistér-tartományban a Wigner-függvény hullámvonulatai és oszcillációi valójában az alagúteffektussal illetve a potenciálgát felett átjutó komponensek kvantum-interferenciáját mutatják. Az alagúteffektussal átjutó komponens alagút tartományon kívüli kezdeti kvantum-momentum függvénye lényegében (a numerikus módszer pontosságával) zéró, ahogy azt az alagutazás energiaviszonyai alapján várnánk is (az alagút tartomány kijárata az a hely, ahol a kinetikus energia 0). Ez azonban nem jelenti azt, hogy az alagutazással kijutó komponens ne befolyásolná az eredő kvantum-momentum függvényt: utóbbi tartalmazza az előbbiből származó interferencia tagokat is.

A kvantum-momentum függvénynek az alagút kijáratában felvett értékét kézenfekvő egy klasszikus részecske-propagáció kezdeti impulzus értékének választani, de ettől kissé eltérő megfontolások is kvalitatívan hasonló fázistér-trajektóriákat eredményeznek. Ezek vizsgálata során szintén jól használható a kvantum-momentum függvény: ha a részecske aktuális helyzete a fázistérben jól követi a kvantum-momentum függvény időbeli viselkedését, akkor a klasszikus trajektória jó összhangban van a kvantumos időfejlődéssel.

Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg, **EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben**. Az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja. Munkánkat a TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok is támogatták.

Irodalom

- [1] F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163–234 (2009).
<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>
- [2] A. S. Landsman and U. Keller, Physics Reports **547**, 1 – 24 (2015).
<https://doi.org/10.1016/j.physrep.2014.09.002>

- [3] P. Eckle, et al., *Science* **322**, 1525–1529 (2008).
<https://doi.org/10.1126/science.1163439>
- [4] D. Shafr, et al., *Nature* **485**, 343 (2012).
<https://doi.org/10.1038/nature11025>
- [5] A. S. Landsman and U. Keller, *J. Phys. B* **47**, 204024 (2014).
<https://doi.org/10.1088/0953-4075/47/20/204024>
- [6] N. Camus, et al., *Phys. Rev. Lett.* **119**, 023201 (2017).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.023201>
- [7] U. S. Sainadh, et al., *Nature* **568**, 75–77 (2019).
<https://doi.org/10.1038/s41586-019-1028-3>
- [8] L. Torlina and O. Smirnova *Phys. Rev. A* **86**, 043408 (2012).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.043408>
- [9] H. Ni, et al., *Phys. Rev. A* **97**, 013426 (2018).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.013426>
- [10] M. Lewenstein, et al., *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>
- [11] Sz. Majorosi and A. Czirják, *Computer Physics Communications* **208**, 9–28 (2016).
<https://doi.org/10.1016/j.cpc.2016.07.006>
- [12] A. Czirják, et al., *Opt. Commun.* **179**, 29–38 (2000).
[https://doi.org/10.1016/S0030-4018\(99\)00591-X](https://doi.org/10.1016/S0030-4018(99)00591-X)

THE EFFECT OF SEAM GEOMETRY ON PROPERTIES OF LASER WELDED NICKEL COATED STAINLESS STEEL STRIPES

Gábor Horváth¹, Andor Körmöczy¹, Tamás Szörényi¹, Zsolt Geretovszky¹

¹University of Szeged, Department of Optics and Quantum Electronics,
H-6720 Szeged, Dóm tér 9., Hungary

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.14>

1. Introduction

In the 21st century people finally realized that global warming is a real threat and started to introduce solutions that could protect and save our environment. One of these actions is trying to supply as much of the global energy needs from an electrical source instead of conventional fossil energy sources as possible. One of the most efficient ways for storing electrical energy is through battery cells. The batteries have different, but limited energy storing capacity, depending on their chemistry, and low power-to-weight ratio, in general [1]. As a result, to produce the required power for an electric motor capable of operating a vehicle, a large number of individual cells must be conjoined and integrated into a battery pack [2]. The photograph of a finished battery pack and the simplified scheme of its assembly levels are presented in Figure 1.

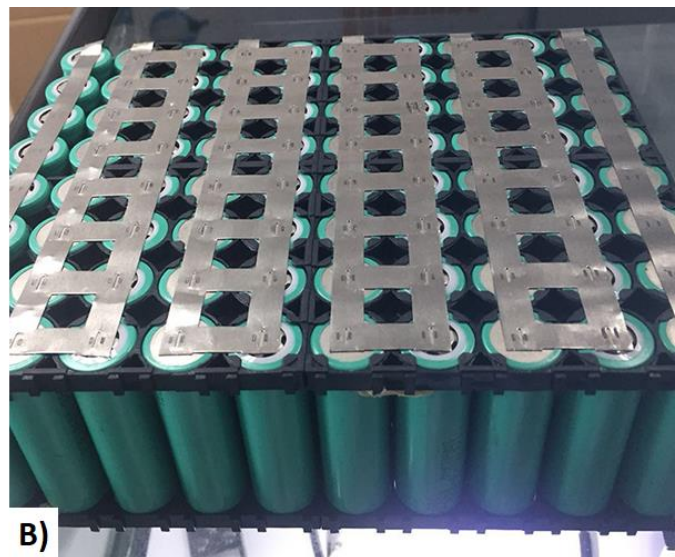
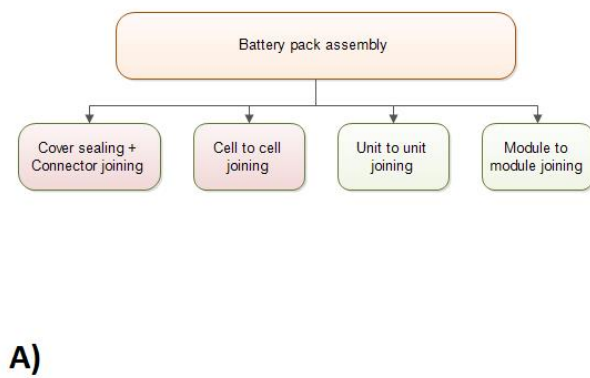


Fig. 1. The assembly scheme (A) and a battery pack (B) [3]

The assembly of a battery pack is a multi-level process during which different types of permanent and non-permanent joining methods are used. As a rule of thumb, on the lower levels of the assembly, where a large number of connections have to be realized (the red boxes in Figure 1), a technique that offers excellent electrical and mechanical properties must be chosen. Welding in general serves as an excellent alternative here especially since certain forms of it are highly automatable as well [4, 5]. Laser (and sometimes ultrasonic) welding is a particularly preferred option for solving battery joining problems in the automotive industry [5, 6, 7]. This convention stems from the highly versatile nature of laser welding. When optimized well laser welded joints exhibit low electrical resistance, accompanied by high mechanical strength. Laser welding can be used for a variety of metal combinations with minimal target distortion as the laser beam is a non-contact “tool” and the heat affected zone can precisely be adjusted. The process is highly automatable, even up to a point where human intervention is not required [4, 5, 8, 9]. Determining the perfect conditions for a particular

welding problem can be deemed quite challenging as numerous laser and non-laser related parameters must be optimized [10].

In the following the behavior of the electrical and mechanical properties in relation to the changes made in the weld seam geometry will be discussed in detail.

2. Experimental

For our experiments, a tailor-made laser welding setup was built in which multiple laser parameters and complementary process conditions could be adjusted in an independent manner with high precision. The simplified view of the experimental setup can be seen in Figure 2.

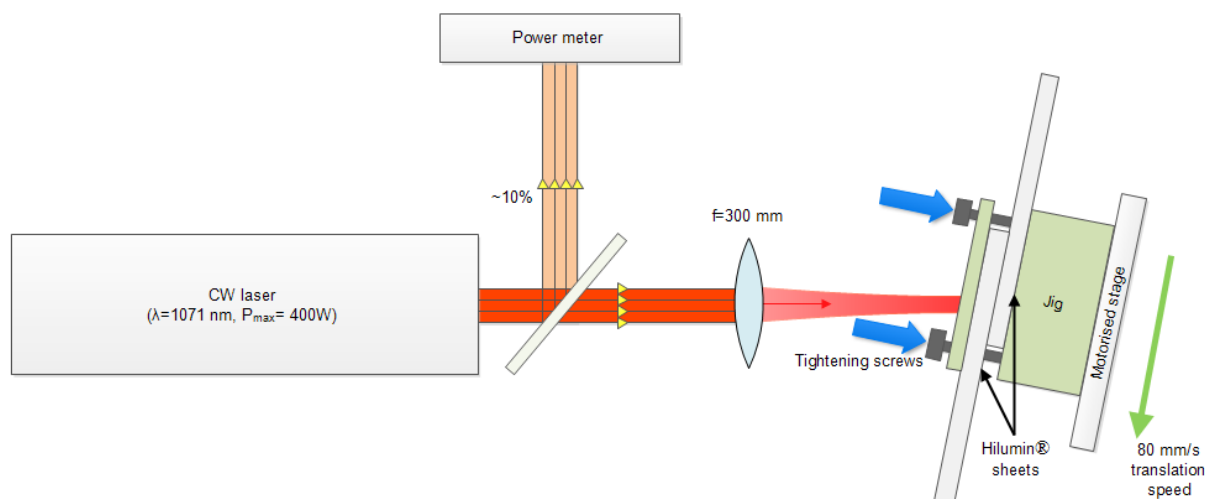


Fig. 2. The sketch of the experimental laser welding setup

An SPI SP-400C-0005 type Yb-doped, cw fiber laser (400 W maximum power, 1071 nm wavelength, single mode, non-polarized) was used as the core of the welding system. The laser beam was focused on the target surface using an N-BK7 glass, 300 mm focal length lens with anti-reflection coating (Thorlabs LA1484-B) resulting in 0.32 mm spot diameter. As target, a pair of 0.25 mm thick, 9 mm wide nickel coated (measured to be approx. 10 μ m layer on both sides) stainless steel (Hilumin®) sheets was used. The housing of battery cells is commonly made of Hilumin® therefore we used these samples as a model representation of the cap of the cell and the connecting stripe. The metal sheets were fastened in a custom-made jig and aligned at 10-degree angle relative to the laser beam to avoid back reflection. The jig was fixed to a programmable high-speed table (Allen Bradley Ultra 3000) that can operate in the 0-500 mm/s speed range with high acceleration rate and velocity precision, during the experiments a constant 80 mm/s speed was used. This setup allowed us to manufacture laser welded joints in lap configuration with high reproducibility.

For the mechanical testing of the laser welded samples a tensile tester machine (Tinius Olsen H5KT) was used. In order to gain tensile-shear strength values from the maximum force values measured by the tester machine, the bonding areas were determined by the analysis of microscope images of the weld area between the two metal sheets taken after fracturing, using an optical microscope (Olympus DSX510).

The measurement process of the electrical properties of the laser welded joints was slightly more challenging as no standardized method was available. This is due to the fact that the conductivity of welded joints in general is a rarely discussed subject. For our electrical measurements we chose to

use a variant of the measurement method introduced by Schmidt *et al.* [11] and calculated the resistance of the welded samples along a fixed 21 mm length, incorporating the laser welded joint in its geometrical center. For the 4-point-probe measurements a desktop multimeter (Keithley 2401) was used to measure the voltage drop, while the current was provided by a power supply unit (TTi CPX200). The resistance values calculated from these measurements do not provide the joint resistance directly, they can however be used to derive tendencies and make comparisons in a standardized manner (e.g. fixed specimen thickness, width and measurement length).

3. Results

In our experiments we focused on changing the geometry of the weld seam while keeping the laser parameters constant and observed the effect of the changes on the joint's electrical and mechanical properties. During the experiments, the incident laser power was kept at 360 W, the welding speed at 80 mm/s with the processing laser beam focused to a spot diameter of 0.32 mm. These parameters were chosen based on our previous, extended measurement results on seam morphology for this material. The detailed methodology of a similar morphological study on DC01 steel can be followed in one of our previous publication [12]. According to these results this set of laser parameters yielded a rather consistent single wave type, uniform weld bead with highly reproducible properties and stable joint area size that were pivotal for our present study.

When investigating the effects of changes in the geometry of the seam it was of great importance to keep the joint area constant. Accordingly, the length of the beads was chosen to keep the total area of each joint at 1.26 mm². The actual values obtained for each pattern are depicted in Figure 3 with the average indicated by the horizontal orange line and the yellow zone representing the 95% confidence interval. Each bar represents the data average and the respective errors of 2 independent measurements.

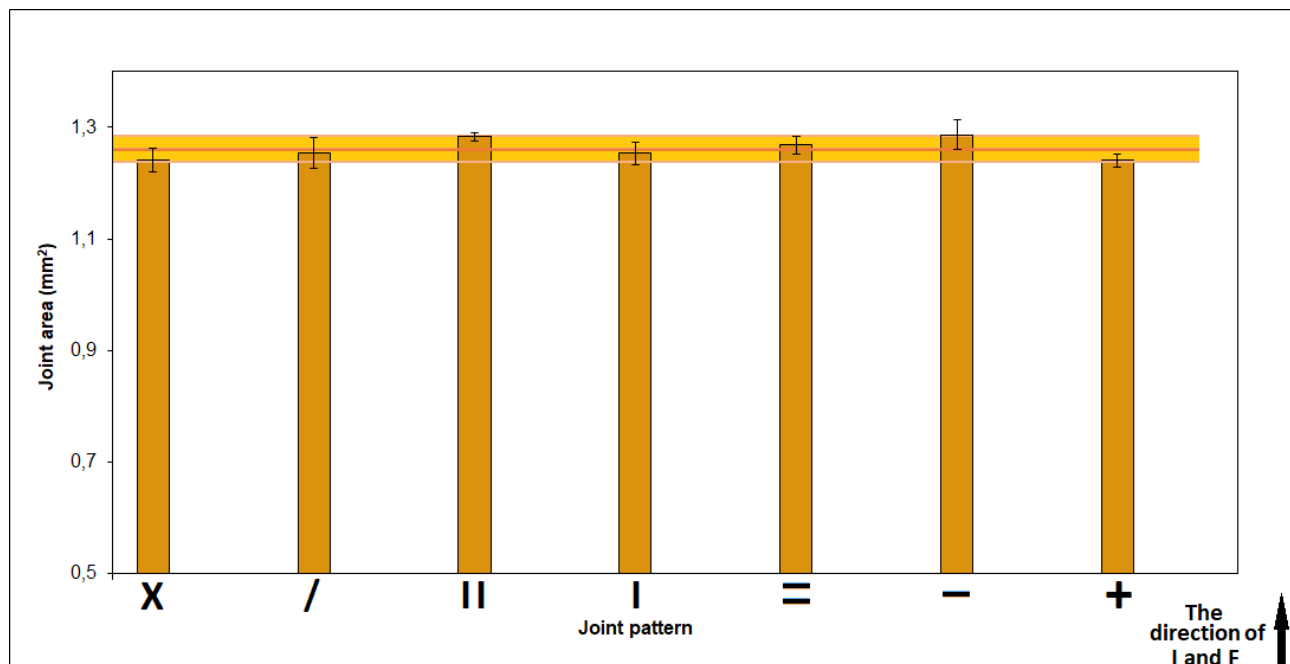


Fig. 3. The measured joint areas of the different weld seam geometries (the black arrow in the bottom right corner indicates the direction of the measuring current and force) [360W incident laser power, 80mm/s scanning speed, 0.32 laser spot diameter]

The symbols on the horizontal axis of Figure 3 indicate the shape and the bead contour's orientation relative to the measuring electrical current and testing force (being parallel to the vertical, Joint area axis of the graph). The black arrow in the bottom right corner of Figure 3 indicates the directions of the measuring electric current and the tensile force during testing. Every direction indicating term hereafter is relative to this fixed direction. In order to categorize the different seam geometry types, three distinct basic categories were introduced: double, quasi-double and single. The terminology “double” refers to seam geometries that consist of two independent, non-overlapping sections, “quasi-double” contours are made up from two straight lines that are interconnected through a junction and finally “single” refers to seams with a singular continuous form without bifurcations. As an example, the symbol “|” means a single straight bead parallel to the measuring current and tensile force and a “=” symbol means a double bead perpendicular to it. The electrical and mechanical characteristics of the 7 weld seam geometries are shown in Figure 4 and 5 compared also to the ones of an unwelded Hilumin® base metal.

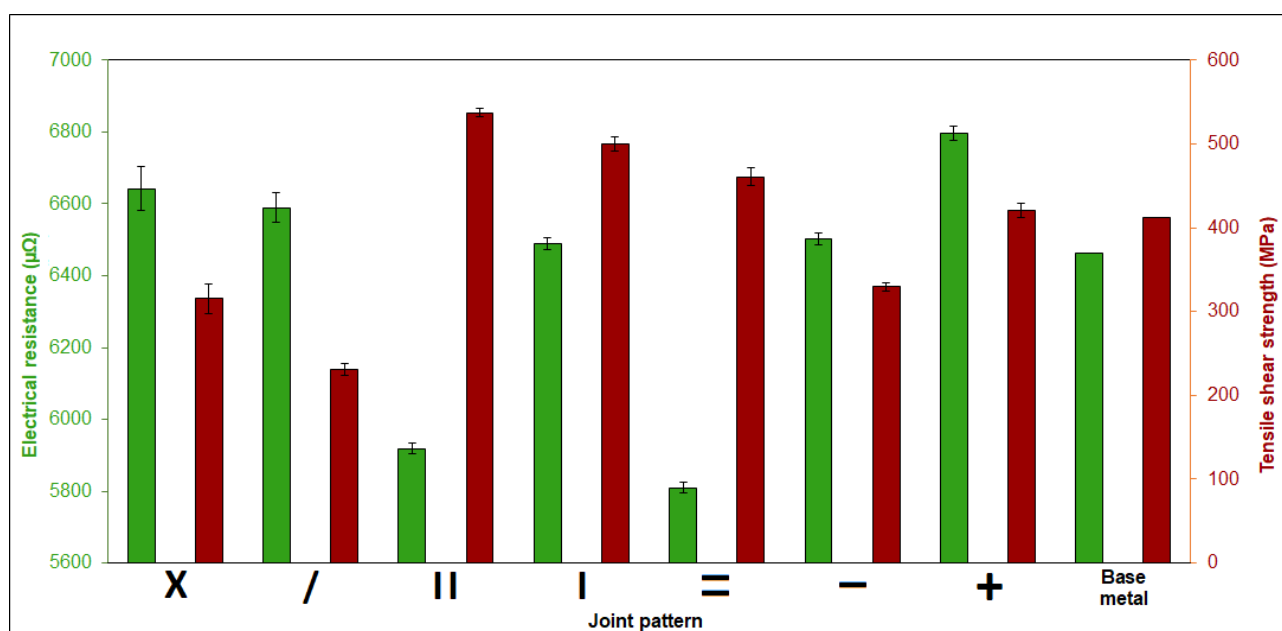


Fig. 4. The dependence of the electrical resistance and mechanical strength of the Hilumin® samples on the geometry of the weld seam [360W incident laser power, 80mm/s scanning speed, 0.32 laser spot diameter]

In Figure 5 the electrical resistance is swapped for electrical conductivity and plotted against mechanical strength to make a practically more relevant representation. As a result, the best joints in terms of both electrical and mechanical properties can be found in the upper right corner of Figure 5.

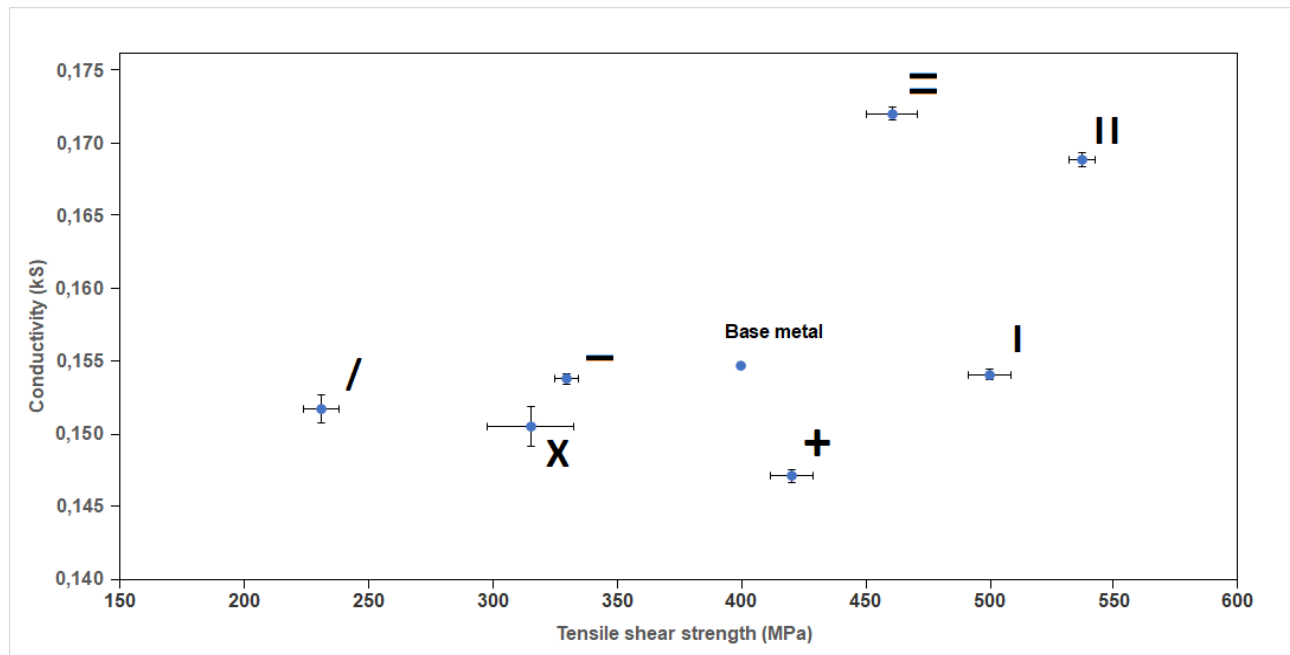


Fig. 5. The electrical conductivity as a function of the tensile shear strength of differently shaped laser welded joints [360W incident laser power, 80mm/s scanning speed, 0.32 laser spot diameter]

An important message of Figures 4 and 5 is that those patterns that consist of mostly parallel sections possess greater mechanical strength. As an example, when rotating the single perpendicular bead by 90 degrees the average mechanical strength rises from 329.9 MPa to 500.1 MPa. This is in line with the expectations as a parallel section is affected by higher torque during the mechanical tests. The samples with double parallel beads have the best mechanical strength, namely 537.4 MPa.

In terms of electrical conductivity, the double perpendicular configuration seems to be the best with 0.172 kS. In general, shapes including two non-overlapping sections yield better electrical and, most of the time better mechanical properties. For instance, when using double joints instead of single ones the conductivity rises from 0.154 kS to 0.168 kS, and from 0.153 kS to 0.172 kS in the parallel and perpendicular cases, respectively.

When considering the diagonal beads oriented 45-degree with respect to the axis of the current, they seem to possess worse electrical and mechanical properties when compared to the others. Using a quasi-double configuration of this version, the "x" shape improves the mechanical, but decreases the conductive properties. When rotating this "x" shape and forming a "+" the mechanical strength rises further but the electrical conductivity falls. We also note that at this 1.26 mm² joint area size the electrical properties of the base metal could not be surpassed when using a weld pattern without non-overlapping sections.

The discussed experiments were also carried out on 0.5 mm thick non-coated DC01 steel stripes and the same tendencies were observed regardless of changing both the material and the thickness of the welded sheets, suggesting the universal nature of the tendencies, reported above.

4. Conclusion

In this paper we described the effect of a less frequently discussed laser welding process parameter, the weld seam geometry on the electrical and mechanical properties of the joint.

In brief, our results on the seam geometry in laser welding of nickel coated stainless steel stripes suggest, that the following conditions are beneficial for obtaining optimum weld performance:

- The contour of the weld bead should consist of two non-overlapping sections.
- For optimum mechanical properties, seam geometries including sections mostly parallel to the measuring current and force are preferred.
- The double perpendicular bead configuration should always be applied when the electrical properties are of essence, as it drastically improves the electrical conductivity of the joint.

The observed tendencies apply not only on Hilumin®, but on non-coated DC01 steel samples as well, substantiating the universality of our observations.

Acknowledgements

Our work is supported by the EFOP-3.6.1-16-2016-00014 project, entitled “Research and development of disruptive technologies in the area of e-mobility and their integration into the engineering education”.

We would like to acknowledge Edutus University for providing the laser and some other supplementary equipment for our experiments.

References

- [1] I. Gál, I. Jankovics, Gy. Bicsák, Á. Veress, J. Rohács, D. Rohács, Conceptual design of a small 4-seater aircraft with hybrid propulsion system, Innováció és Fenntartható Felszíni Közlekedés konferencia 2017 pp. 143-150. (2017)
- [2] S. S. Lee, T. H. Kim, S. J. Hu, W. W. Cai, J. A. Abell, Joining technologies for automotive lithium-ion battery manufacturing – A Review, ASME Proceedings Paper No. MSEC2010-34168, pp. 541-549. (2010)
<https://doi.org/10.1115/MSEC2010-34168>
- [3] <https://www.szsunlaser.com/en/photo/dldchj.html> (2020.11.25.)
- [4] J. F. Ready, LIA Handbook of laser materials processing, (Magnolia Publishing, 2001)
- [5] K. Ferjutz, J. R. Davis, ASM Handbook Vol. 6 Welding, brazing and soldering, (ASM International, 1993)
- [6] M. J. Brand, P. A. Schmidt, M. F. Zaeh, A. Jossen, Welding techniques for battery cells and resulting electrical contact resistances, J. Energy Storage 1 pp. 7–14. (2015)
<https://doi.org/10.1016/j.est.2015.04.001>
- [7] B. Mehlmann, E. Gehlena, A. Olowinskya, A. Gillner, Laser micro welding for ribbon bonding, Phys. Proc. 56 pp. 776-781. (2014)
<https://doi.org/10.1016/j.phpro.2014.08.085>
- [8] C. Dawes, Laser welding – a practical guide, (Abington Publishing, 1992)
- [9] S. Katayama, Handbook of laser welding technologies, (Woodhead Publishing, 2013)
- [10] P. A. Schmidt, P. Schmitz, M. F. Zaeh, Laser beam welding of electrical contacts for the application in stationary energy, J. Laser Appl. 28 #022423 (2016)
<https://doi.org/10.2351/1.4943908>

- [11] P. A. Schmidt, M. Schweier, M. F. Zaeh, Joining of lithium-ion batteries using laser beam welding: electrical losses of welded aluminum and copper joints, ICALEO 2012, Paper #805 (2012) <https://doi.org/10.2351/1.5062563>
- [12] G. Horváth; A. Körmöczy; T. Szörényi; Zs. Geretovszky, Laser welding and its implementation in the assembly of battery packs in aviation, International Journal of Sustainable Aviation Vol.6 No.1, pp.51 – 65 (2020) <https://doi.org/10.1504/IJSA.2020.108094>

TERAHERTZES IMPULZUSOK ELŐÁLLÍTÁSA LEKÉPZÉS NÉLKÜLI MIKROSTRUKTURÁLT LÍTIUM-NIOBÁT KRISTÁLYBAN

Illés Gergő¹, Sarkadi Balázs¹, Mészáros Anna¹, Tibai Zoltán¹, Pálfalvi László¹, Almási Gábor^{1,2}, Hebling János^{1,2,3}, Tóth György^{1,2}

¹PTE-TTK Fizikai Intézet, 7624 Pécs, Ifjúság u. 6, Magyarország

²Szentágotthai János Kutatóközpont, 7624 Pécs, Ifjúság u. 20, Magyarország

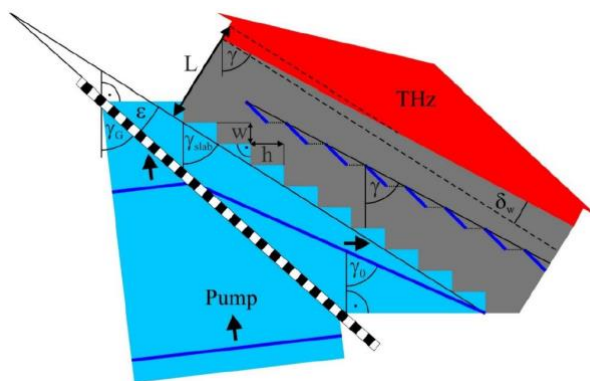
³MTA-PTE Nagyintenzitású Terahertzes Kutatócsoport, 7624 Pécs, Ifjúság u. 6, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.15>

1. Bevezetés

A nagy energiájú terahertzes (THz-es) impulzusok generálására széles körben elterjedt módszer ultrarövid lézerimpulzusok optikai egyenirányítása lítium niobát (LN) kristályban döntött impulzusfrontú gerjesztést alkalmazva [1]. A nagy energia mellett nagy csúcstérerősséggel (>1 MV/cm) rendelkező THz-es impulzusok a nemlineáris spektroszkópia mellett [2] egyre ígéretesebbnek tűnnek részecskegyorsításra [3] [4], vagy akár alakformált attoszekundumos impulzusok létrehozására [5].

Utóbbi két alkalmazás esetén felvetődött az eddigieknél is nagyobb energiájú THz-es impulzusok előállításának szükségessége. Bár a döntött impulzusfrontú technikának köszönhetően mára rutinszerűvé vált a nagy energiájú THz-es impulzusok előállítása, az energia további növelése nem látszott megoldhatónak. Ez három fő okra vezethető vissza: egyrészt a prizma alakú kristály, amiben a THz-es impulzus keletkezik, olyan THz-es nyalábot tud csak létrehozni, melynek térerősségfutása a keresztmetszet mentén inhomogén. Másrészt a szükséges nagy impulzusfront dőlési szög jelentős szögdiszperzióval jár együtt, mely a keltő impulzus hosszának és ezzel együtt csúcshintenzitásának gyors változását eredményezi a keltés során. Harmadrészt a leképzési hibák is jelentős korlátozó tényezőként jelennek meg. Ezen korlátozó hatások enyhítése, vagy megszüntetése érdekében több megoldás is született az elmúlt években [6] [7] [8].



1. ábra. Leképzés nélküli NLES sematikus ábrája. A sötétkék vonalak a pumpa impulzusfrontját mutatják be három különböző időpillanatban (diffrakciós rács előtt, diffrakció során és a kristályban). [8]

Az egyik ilyen, kifejezetten rövid pumpáló impulzusok esetén jól alkalmazható megoldás a leképzés nélküli NLES (NonLinear Echelon Slab), mely elrendezés sematikus rajzát az 1. ábra mutatja be. Ebben az esetben a kristály pumpa oldali felületén tipikusan 50-70 μm széles lépcsős kristályszerkezetet, úgynevezett echelon-rácsot alakítunk ki. Ezzel elkerülhetővé válik a – hagyományos döntött impulzusfrontú technikánál használt – nagy (63° körüli) ékszög használata. Az echelon-rács alkalmazása abban a speciális esetben, amikor (a transzmissziós optikai rácson történő diffrakció eredményeként) az echelon-rács előtt az impulzusfront dőlés mértéke megegyezik a

hatékony THz keltés érdekében a LN kristályban elérendő 63° dőléssel, lehetővé teszi plán-parallel LN kristály alkalmazását. Fontos megjegyezni, hogy a hagyományos döntött impulzusfrontú elrendezés esetén a pumpáló impulzus frontjának 77° dőléssel kell rendelkeznie a LN kristályba történő belépés előtt. A két szög tangensének aránya a LN csoport-törésmutatójával, 2,25-el egyezik meg.

A fenti mértékben kisebb dőlési szög $2,25^2 = 5,06$ -szor lassúbb impulzushossz-változást eredményez a LN kristályban. Az optikai rács és a LN kristály között leképzést használva, ez a speciális elrendezés megvalósítható úgy, hogy a LN kristály plán-parallel [7,9]. Azonban a leképzés kb 2 cm-es felső határt szab a pumpáló nyaláb átmérőjére. Az 1. ábra szerinti, leképzés nélküli NLES esetén leképzési hibák nyilván nem lépnek fel, de ekkor a LN-nak ékesnek kell lenni, legalábbis abban az esetben, ha a transzmissziós rácsot az 1. ábra szerinti szimmetrikus (Littrow) elrendezésben használjuk. Ekkor $\delta_w = 9,5^\circ$ fókés LN-t kell használni [8]. Ez az elrendezés 4 cm pumpáló foltátmérő alkalmazását teszi lehetővé [8].

2. Eredmények

Annak érdekében, hogy a pumpáló nyaláb méretét, és azzal az elérhető THz-es energiát tovább növelhessük megvizsgáltuk azt a lehetőséget, hogy a leképzés nélküli esetben a transzmissziós rácsot nem szimmetrikus elrendezésben használjuk. Nyilvánvaló, hogy abban az esetben, ha a pumpáló nyaláb merőlegesen érkezik a rácsra, akkor a rács párhuzamos lehet a LN belépő felületével ($\varepsilon = 0^\circ$), és a LN plán-parallel lehet ($\delta_w = 0^\circ$). Ennek megvalósításához 1030 nm-es pumpálási hullámhossz esetén olyan rácsot kell használnunk, melynek karcolatsűrűsége 868 vonal/mm. Numerikus számításokkal megmutattuk, hogy ilyen elrendezés esetén a rács diffrakciós hatásfoka mindössze 33%.

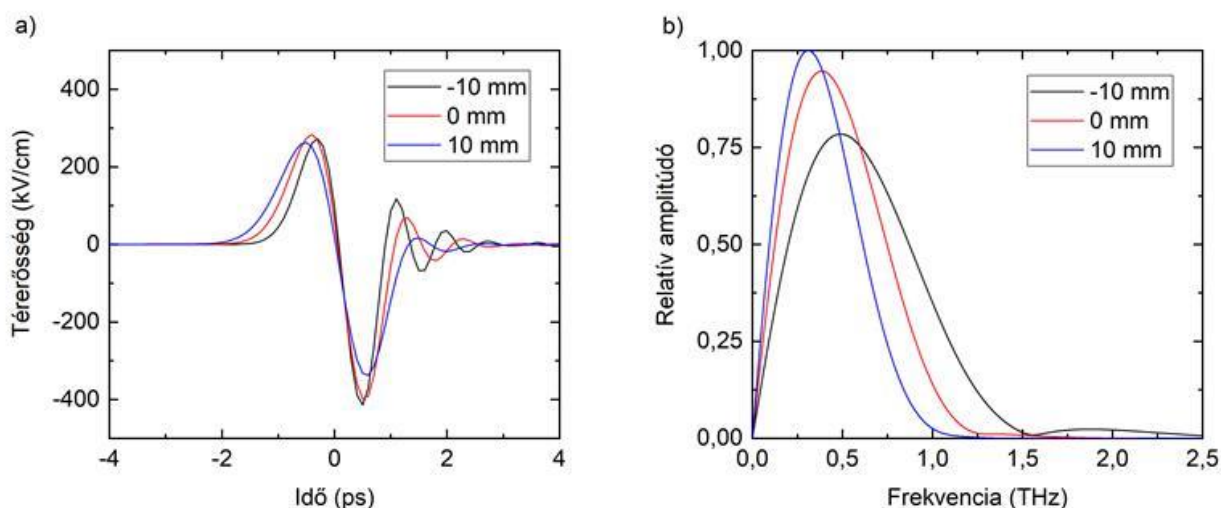
Jól látszik tehát, hogy a diffrakciós veszteségek elkerülése érdekében olyan rácsot és elrendezést kell használni, mely esetben a rácsra való beesés közel van a rács adott hullámhosszhoz tartozó Littrow-szögéhez. Ez ugyanakkor azt is jelenti, hogy a pumpa nem merőlegesen fog a diffrakciós rácsra esni, ezért vagy a rács és az NLES pumpa felőli oldala, vagy az NLES elő-és hátoldala nem lehet párhuzamos egymással.

A következőkben, a [8]-as referenciában használt numerikus modellt felhasználva bemutatjuk, hogy Littrow-szögű elrendezés, illetve Littrow-szögtől eltérő elrendezések esetén milyen impulzusalakok és milyen hatásfokú THz-generálás érhető el. A szimulációban a pumpáló lézer központi hullámhossza $\lambda_0 = 1030$ nm, impulzushossza $\Delta t = 200$ fs, csúcsintenzitása: $I_0 = 70 \frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$.

a.) Littrow-szögű elrendezés

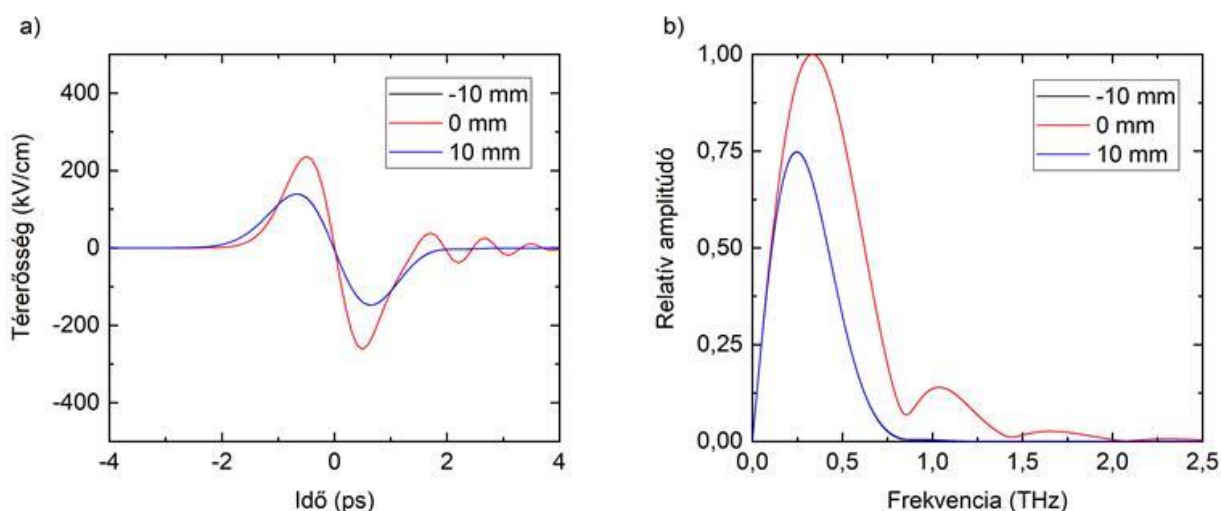
Az az eset, amikor a diffrakciós rács és az NLES rács felőli oldala párhuzamos és a pumpa Littrow-szögben éri a rácsot, 1570 vonal/mm-es karcolatsűrűségű ráccsal érhető el. Ilyenkor a diffrakciós hatásfok 87%, az NLES ékszőge $\delta_w = 9,5^\circ$.

A 2. ábra mutatja be a létrehozható THz-es impulzus térerősségfutasát és spektrumát a THz-es nyaláb keresztmetszetének három különböző részén (a közepén, illetve attól 10 mm-re balra és jobbra). Az ábrákon látható, hogy az elrendezés által keltett THz-es impulzus spektruma a pumpa szimmetriatengelyétől a kristály vastagabb részei felé haladva (10 mm) eltolódik az alacsonyabb frekvenciák irányába. Ennek oka a kristály THz-es abszorpciójának növekedése a magasabb frekvenciák esetén. A hatást a térerősségfutasokon is megfigyelhetjük. A THz-keltés hatásfoka ebben az esetben 2,2 %.



2. ábra. Littrow szögű elrendezés esetén a keletkező THz-es impulzus térerősségfutamata (a) és spektruma (b) különböző pontokban a nyaláb keresztmetszete mentén. A rács és az NLES pumpa felőli oldala párhuzamos.

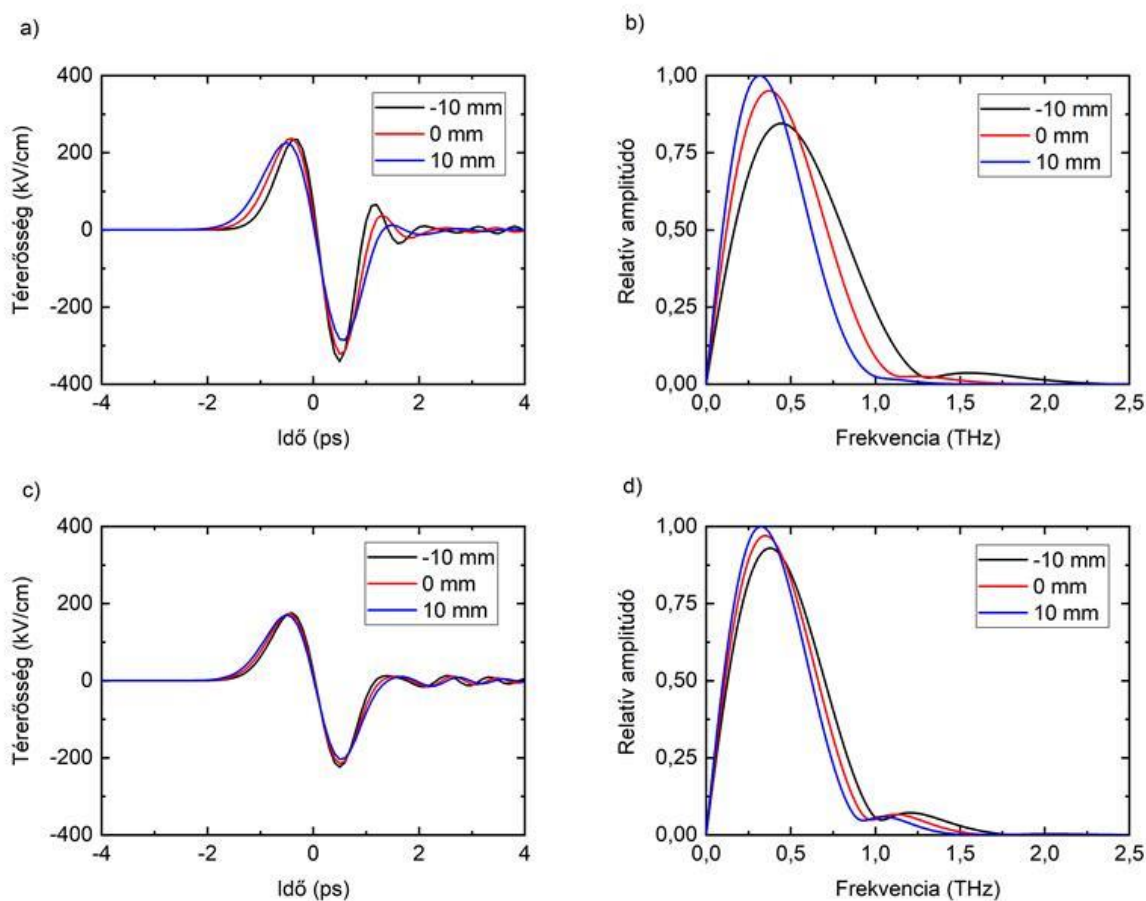
Ahogy arról már szó esett Littrow-szögű beesés esetén, olyan elrendezés is megvalósítható, hogy az NLES oldalfalai párhuzamosak. Ehhez 1370 vonal/mm karcolatsűrűségű rácsra van szükség, mely 92%-os diffrakciós hatásfokkal működik. A rács és a kristály pumpa oldali felülete közti szög: $\varepsilon = 18^\circ$. A számolások eredményét a 3. ábra foglalja össze. Látható, hogy a pumpa szimmetriatengelyétől egyforma távolságokra eltérve a térerősségek és a spektrumok fedésben vannak egymással. Ez abból ered, hogy a pumpa olyan előcsörppel rendelkezik, hogy az a fourier-limitált impulzushosszt a kristály és a nyaláb közepén érje el. Mivel nem használunk leképzést, jelen esetben a pumpa jelentős térbeli csörppel rendelkezik. Ez a csörp azonban ebben az esetben szimmetrikus a pumpa középvonalára. Az elrendezés hatásfoka 1,3%, ami az előző eset 60%-a. Az eredményekből látszik, hogy Littrow-szögű elrendezés esetén nem használható párhuzamos falú kristály, ha a keresztmetszet mentén homogén térerősségfutamata szeretnénk megkövetelni. Hogy az ékszöveget mégis mérsékelni tudjuk, megvizsgáltuk, hogy milyen impulzusalakokat és keltési hatásfokot érhetünk el, amennyiben nem követeljük meg a Littrow-szögű beállítást. A továbbiakban ezeket az eredményeket mutatjuk be.



3. ábra. Littrow szögű elrendezés esetén a keletkező THz-es impulzus térerősségfutamata (a) és spektruma (b) különböző pontokban a nyaláb keresztmetszete mentén. A kristály oldalfalai párhuzamosak.

b.) Littrow-szögtől eltérő elrendezés

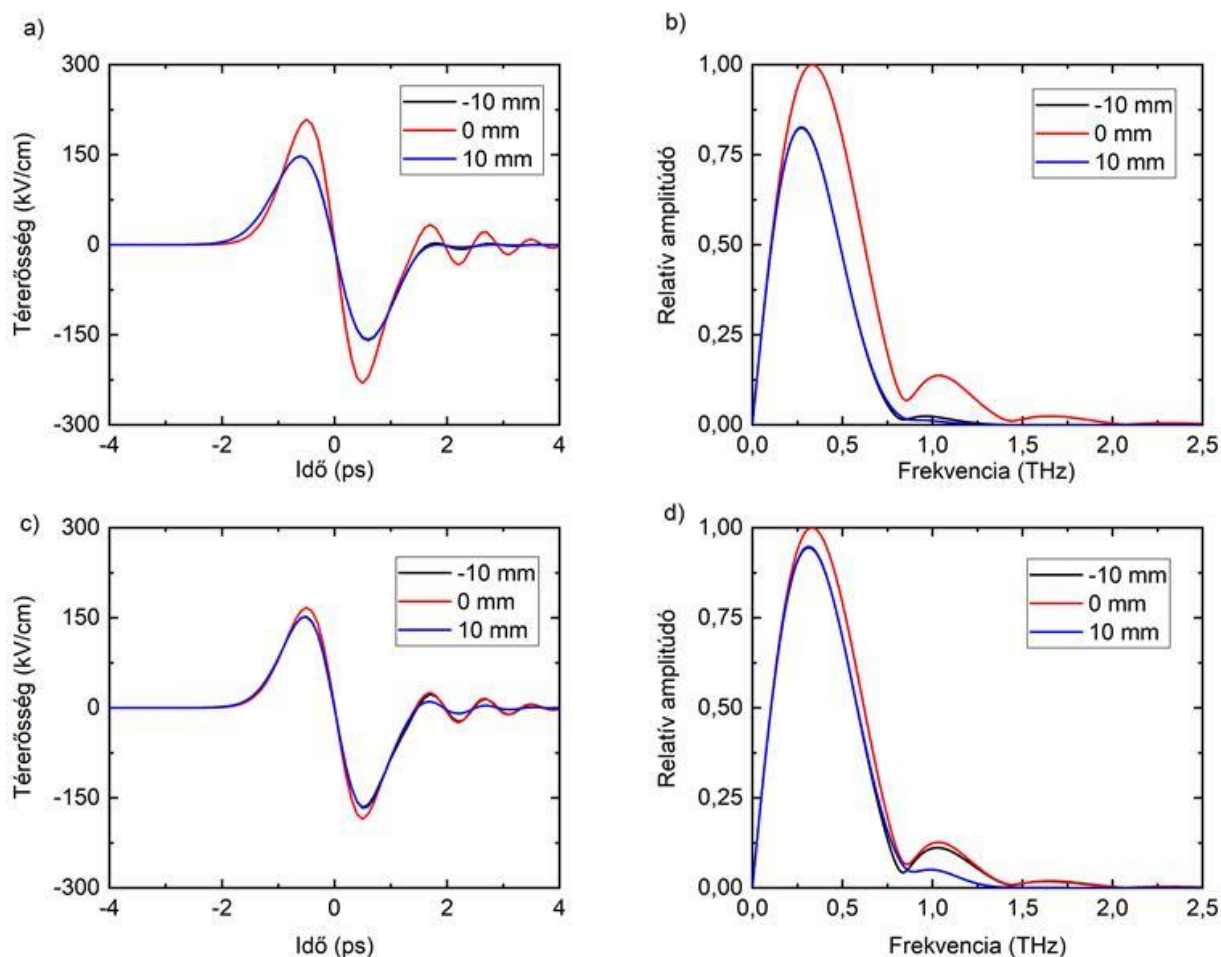
A 4. ábrán láthatóak azok az eredmények, amikor a rács párhuzamos a kristály rács felőli felületével és a pumpa impulzus 10° -al (a,b ábrák), illetve 20° -al (c,d ábrák) tér el a Littrow-szögtől. Ezen esetekben a rács karcolatsűrűsége 1360, illetve 1075 vonal/mm. A pumpa rácsra való beesési szöge $34,6^\circ$, illetve $13,6^\circ$. Az NLES ékszöge $6,6^\circ$, valamint $2,7^\circ$. Az eredményeken jól látható, hogy minél párhuzamosabbak a falak, annál homogénebb THz-es sugárzás állítható elő. A rács diffrakciós hatásfoka az első esetben (10° -os Littrowtól való eltérés esetén) 72,7%, a másodikban (20° -os Littrowtól való eltérés esetén) 46,3%. Ezen veszteségeket is figyelembe véve a THz keltés hatásfoka a rendre 1,5%, és 0,8%. Ugyan a 0,8% elfogadható kompromisszumnak tűnik, azonban figyelemmel kell lenni arra is, hogy a rács 46,3%-os első rendű diffrakciós hatásfoka azt is jelenti egyben, hogy a pumpa energiájának túlnyomó része a nulladik, vagy a magasabb rendekben fog megjelenni, mely nyalábok szintén bejutnak a kristályba és negatívan befolyásolhatják a THz-es impulzus alakját és a keltés hatásfokát.



4. ábra. Littrow szögtől 10° -os (a, b), illetve 20° -os (c,d) eltérés esetén a keletkező THz-es impulzus térerősségfutása (a, c) és spektruma (b,d) különböző pontokban a nyaláb keresztmetszete mentén. A diffrakciós rács és a kristály rács felőli oldala párhuzamos.

Az 5. ábrán azokat az eredményeket mutatjuk be, amikor a kristály falai párhuzamosak. Ilyenkor a megfelelő elődöntés létrehozására 1225 vonal/mm-es, illetve 1025 vonal/mm-es karcolatsűrűségű rácsot kell használnunk a Littrow-szögtől való 10° -os (a és b ábra), illetve 20° -os (c és d ábra) eltérések esetén. Az előző esethez hasonlóan minél közelebb vagyunk a $26,5^\circ$ -os Littrow-szögtől való eltéréshez (amikor a pumpa merőlegesen esik a rácsra és mind a rács, mind a kristály oldalai

párhuzamosak egymással), annál inkább homogén térerősségfutasokat kapunk. Ezekben az esetekben a térbeli csörp mértéke egyre kisebb mértékű. A diffrakciós hatások az egyes esetekben: 75,4%, illetve 49,5%. A THz-generálás hatásfoka 1%, illetve 0,7%.



5. ábra. Littrow szögtől 10°-os (a, b), illetve 20°-os (c,d) eltérés esetén a keletkező THz-es impulzus térerősségfutasása (a, c) és spektruma (b,d) különböző pontokban a nyaláb keresztmetszete mentén. A kristály oldalfalai párhuzamosak.

3. Összegzés

A bemutatott elrendezések közül mind homogenitás, mind az előállított impulzusalak tekintetében azon eseteket tartottuk a legjobbaknak, ahol a rács és a kristály pumpa oldali felülete párhuzamos. Ezt az esetet emelte ki [8]-as közlemény is, melyben csak Littrow-szögű elrendezéseket vizsgáltunk. Abban az esetben az NLES ékszöge 9,4° volt. A Littrow-szögtől való még tolerálható, 10°-os eltérés esetén ez a szög 6,6°-ra csökkenthető, mely nem csak a nyaláb homogenitásán segít, hanem közel kétszeresére növeli a használható kristáyméretet is. Részletes számításokkal igazoltuk, hogy ebben az esetben 182 mJ-os pumpáló energiával 2,4 mJ-os THz-es impulzusok állíthatók elő.

Köszönetnyilvánítás

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosító számú, Ultra-gyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben című projekt, az 125808 számú Terahertzes részecskegyorsítás című OTKA-pályázat, valamint az ÚNKP-20-5-PTE-491 számú Bolyai+ Felsőoktatási Fiatal Oktatói, Kutatói Ösztöndíj támogatta.

Irodalomjegyzék

- [1] J. Hebling, G. Almási, I. Kozma és J. Kuhl, „Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation,” *Opt. Express* 10, pp. 1161-1166, 2002.
<https://doi.org/10.1364/OE.10.001161>
- [2] K.-E. Peiponen, A. Zeitler és M. Kueata-Gonokami, *Terahertz Spectroscopy and Imaging*, Springer Series in Optical Sciences 171, 2013, p. 171.
<https://doi.org/10.1007/978-3-642-29564-5>
- [3] E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. D. Miller és F. X. Kärtner, „Terahertz-driven linear electron acceleration,” *Nat. Commun.* 6, p. 8486, 2015.
<https://doi.org/10.1038/ncomms9486>
- [4] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Tóth és J. Hebling, „Evanescent-wave proton postaccelerator driven by intense THz pulse,” *Phys. Rev. ST Accel. Beams* 17, p. 031301, 2014.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.17.031301>
- [5] G. Tóth, Z. Tibai, A. Sharma, J. A. Fülöp és J. Hebling, „Single-cycle attosecond pulses by Thomson backscattering of terahertz pulses,” *J. Opt. Soc. Am. B* 35A103, 2018.
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.00A103>
- [6] B. K. Ofori-Okai, P. Sivarajah, W. R. Huang és K. A. Nelson, „THz generation using a reflective stair-step echelon,” *Opt. Express* 24, p. 5057, 2016.
<https://doi.org/10.1364/OE.24.005057>
- [7] L. Pálfalvi, G. Tóth, L. Tokodi, Z. Márton, J. A. Fülöp, G. Almási és J. Hebling, „Numerical investigation of a scalable setup for efficient terahertz generation using a segmented tilted-pulse-front excitation,” *Opt. Express* 25, pp. 29560-29573, 2017.
<https://doi.org/10.1364/OE.25.029560>
- [8] G. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Krizsán, N. H. Metlis, G. Almási és J. Hebling, „Numerical investigation of imaging-free terahertz generation setup using segmented tilted pulse-front excitation,” *Opt. Express* 27, p. 7762, 2019.
<https://doi.org/10.1364/OE.27.007762>

AZ ATOMI MAGASFELHARMONIKUS-KELTÉS POLARIZÁCIÓFÜGGÉSE DISZKRÉT BÁZIS ESETÉN

Kasza József^{1,3}, Dombi Péter^{1,2}, Földi Péter^{1,3}

¹ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Kft., Wolfgang Sandner utca 3, 6728 Szeged

²Wigner Fizikai Kutatóközpont, Konkoly-Thege M. út 29-33, 1121 Budapest

³Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, Tisza L. krt. 84-86, 6720 Szeged

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.16>

1. Bevezetés

Atomi rendszerek esetén a magasrendű felharmonikusok keltése jól ismert, mind kísérletileg [1,2], mind pedig elméleti úton sokat tanulmányozott jelenség [3,4]. A legelterjedtebb elméleti magyarázat ráadásul jól interpretálható, szemléletes képet szolgáltat: Az erős lézertér kiszakítja az atomi elektront a mag vonzásából, felgyorsítja azt, de a következő optikai félciklusban az elektron visszatér, és a mozgása során nyert energiát részben magasfelharmonikusok formájában bocsátja ki. Ehhez természetes az szükséges, hogy az elektron valóban „visszatérjen”, azaz a második optikai félciklusban hullámfüggvényének jelentős része fedjen át a kiinduló atommal. Ez lineárisan polarizált gerjesztő tér esetén meg is történik, ugyanakkor könnyen látható módon a cirkulárisan poláros tér olyan klasszikus trajektóriákat hoz létre, amelyek nem térnek vissza a kiindulópontra. Ezt a valós térben végzett kvantummechanikai számítások is igazolják. Természetesen a magasfelharmonikus-keltés polarizációfüggése kísérletileg is ismert, sőt technológiai szempontból is alkalmazott tény (polarizációs kapuzás [5]). Érdekes módon több atomot tartalmazó klaszterek esetén is kimutatható a polarizációfüggés [6,7].

Felmerül a kérdés, hogy ha nem a valós térben, hanem egy diszkrét bázison írjuk le a jelenséget, hogyan interpretálható ez a tapasztalat. Hidrogén atomra gondolva, ez a bázis természetesen nem lehet a kötött állapotok szokásosan n, l, m kvantumszámokkal indexelt rendszere, hiszen azok nem tartalmazzák a pozitív energiás, szórt állapotokat, amelyek szerepe a fentiek alapján alapvető a felharmonikusok létrejötte szempontjából. Ezzel szemben az ún. Sturm-állapotok [8] olyan bázist alkotnak, amelyek diszkrét rendszert alkotnak, ugyanakkor tartalmazzák a szórt állapotokat is. A továbbiakban ezt a bázist alkalmazva mutatunk rá, hogy az átmeneti dipólmomentumok szimmetria tulajdonságai hogyan vezetnek a magasfelharmonikus-keltés polarizációfüggéséhez. Eredményeink egyrészt a folyamat egy alternatív interpretációját adják, másrészt rávilágítanak arra, hogy az átmeneti dipólmomentum mátrixelemek fázisa ebben az esetben is jelentős szerepet játszik. (Egyetlen átmenet esetén ez a fázis nem játszik szerepet, de több átmenetet figyelembe véve a relatív fázisok természetesen lényegesek. Érdekes módon pl. szilárdtestek esetén erre csak az utóbbi években mutattak rá [9].)

2. Modell

Az atomi méreteket figyelembe véve a dipólközelítés nagyon pontos leírást ad már optikai tartományba eső gerjesztés esetén is. Hosszmértéket használva írhatjuk, hogy

$$H = H_{at} - \mathbf{E}(t)\mathbf{D},$$

ahol H_{at} a szabad atom Hamilton-operátora, $\mathbf{E}(t)$ a lézertér elektromos tere, míg \mathbf{D} az atomi dipólmomentum operátora. A továbbiakban először az ezekhez az operátorokhoz tartozó mátrixokat

határozzuk meg a Sturm-bázisban. Ennek a bázisnak ez elemei koordináta-reprezentációban csupán a radiális részben különböznek a szokásos kötött hidrogén állapotoktól. Ez azt is jelenti, hogy a kontinuum reprezentációjában most gömbfüggvények írják le az állapotok szögfüggését, ilyen értelemben "strukturált" kontinuumról beszélhetünk. A szórt állapotok reprezentálhatóságának az ára az, hogy H_{at} nem diagonális ebben a bázisban. Mivel a kiválasztási szabályokat a hullámfüggvények szögfüggő része határozza meg, azok ugyanazok, mint a kötött állapotok esetében. Az egyszerűség kedvéért a bejövő elektromágneses impulzust az x-y síkban polarizáltnak tekintjük, így most csak $D_x = eX$ és $D_y = eY$ játszik szerepet, ami a $\Delta l = \pm 1, \Delta m = \pm 1$ szabályokat jelenti.

A numerikus megoldhatóságot figyelembe véve ennek a bázisnak egy véges részét használjuk, ami praktikus szempontból nem jelent megszorítást, mivel akkora bázist fogunk használni, amely esetén – adott intenzitású külső tér esetén – további bázisállapotok figyelembe vétele már nem befolyásolja az eredményt.

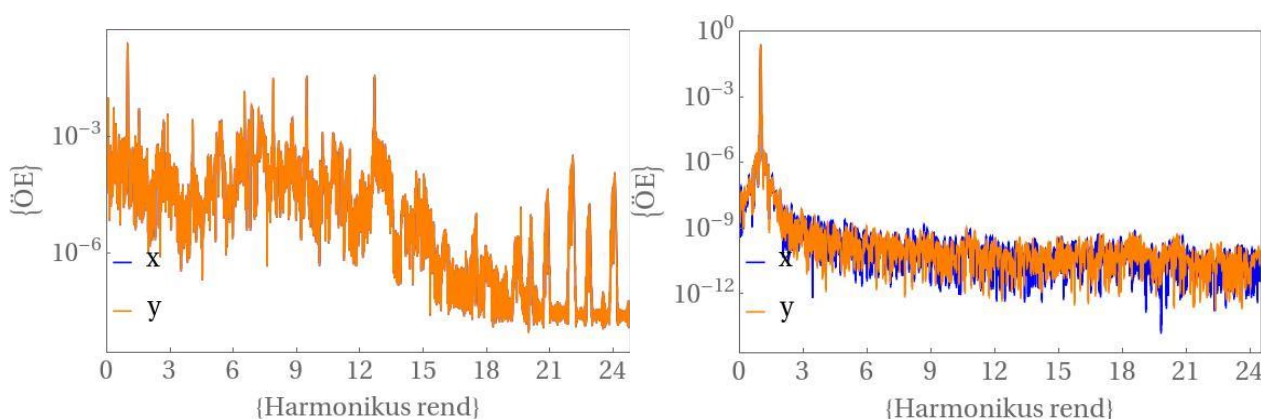
A továbbiakban két típusú, cirkulárisan és (az x irányban) lineárisan polarizált elektromos teret fogunk tanulmányozni. Ekkor

$$DE_{lin} = f(t)\cos(\omega t)(D_x E_0) , \quad DE_{cirk} = f(t)E_0(D_x \cos(\omega t) + D_y \sin(\omega t)), \quad (1)$$

ahol az $f(t)$ burkolófüggvény lassan változik a periódusidőhöz képest. A továbbiakban $f(t) = \cos^2(t/\tau)$, és τ -t úgy választjuk meg, hogy az intenzitás maximumát tekintve viszonylag hosszú, legalább 10 ciklusú impulzusokat vizsgálhassunk.

3. Eredmények

A felharmonikusok frekvencia szerinti eloszlását a \mathbf{D} operátor x és y komponensének időfüggő várható értékéhez tartozó intenzitáspektrumok összege adja. A két típusú gerjesztés esetén a számításainkból adódó spektrumok láthatók az alábbi két ábrán, ahol a függőleges tengelyen önkényes egységeket alkalmaztunk.



1/a Ábra: Lineárisan poláros fénnel gerjesztett atom intenzitáspektruma (A számításnál az x és y tengellyel 45 fokos szöget bezáró polarizációt használtunk)

1/b Ábra: Cirkulárisan poláros fénnel gerjesztett atom válaszjele. (Kékkel a dipól operátor x komponensének várható értékéhez tartozó intenzitáspektrum)

Amint láthatjuk, ezek az eredmények teljesen egybecsengenek azzal, amit mind kísérleti úton, mind pedig a mostani modelltől eltérő elméleti számítások alkalmazásával kaphatunk.

Számításaink azt mutatják, hogy a felharmonikusok hiánya nagyon erősen függ attól, hogy az átmeneti dipólmomentum mátrixelemek (azaz \mathbf{D} mátrixelemei) fázisai pontosan mekkorák is. Ha ezeket a fázisviszonyokat elhanyagoljuk (pl. azzal, hogy minden mátrixelemnek csak az abszolút értékét tekintjük), akkor cirkulárisan poláros gerjesztés esetén is kapunk felharmonikusokat.

Mindez azt sugallja, hogy a magasfelharmonikus-keltés polarizációfüggése kvantummechanikai értelemben vett interferenciajelenségeken múlik. A pontos részletek azt mutatják, hogy ebben az esetben ez nem azt jelenti, hogy maguk az időfüggő Schrödinger egyenlet megoldásai is csak alacsony frekvenciás ($\sim\omega$) komponenseket tartalmaznak. Ez abban a kontextusban érdekes, hogy a probléma sok hasonlóságot mutat a jól ismert kétnívós rendszerek esetével. Ilyenkor persze nincs értelme a kontinuumról beszélni, de az analógia szembeötlő. Kétnívósra tekinthető rendszerek cirkulárisan poláros fénnel történő gerjesztésekor az úgynevezett forgóhullámú közelítés (azaz az átmenetei és a gerjesztő frekvencia összegéhez tartozó oszcillációk elhanyagolása) egzakt, azaz valójában nem is közelítés [10]. Ez azzal is jár, hogy folytonos, monokromatikus gerjesztés esetén a dinamika analitikusan megoldható, és a felharmonikusok teljesen hiányoznak. Esetünkben a probléma összetettebb, de a forgóhullámú közelítésnek megfelelő

$$\mathbf{D}E_{\text{cirk}} = f(t)E_0(D^+ \exp(-i \omega t) + D^- \exp(i \omega t)) \quad (2)$$

összefüggés – amely a dipólmomentum operátor komponenseinek szimmetria tulajdonságaiból fakad – most is fennáll. Itt $D^\pm = D_x \pm iD_y$, és ezekre az operátorokra a $\Delta m = 1$, illetve $\Delta m = -1$ kiválasztási szabályok vonatkoznak. Ez azt jelenti, hogy a gerjesztésben megjelenő pozitív (negatív) frekvenciás részek pusztán növelhetik (csökkenthetik) az m kvantumszámot. Ez azonban esetünkben nem ad könnyen felírható megoldást, és a numerikus módszerek azt mutatják, hogy a rendszer állapotát megadó időfüggő szuperpozícióban megjelennek a felharmonikusok. Emellett az is igaz, hogy nehéz rámutatni a dinamikának olyan kvalitatív részletére, amely az (1) egyenletben részletezett két esetben különbözik. Másszóval, a cirkulárisan poláros gerjesztés esetén hiányzó felharmonikusok nem magától értetődő destruktív interferencia következményei.

Ezzel szemben a dipólmomentum operátor komponensek várható értékének időfüggése már nem tartalmaz felharmonikusokat (így azok a spektrumból is hiányoznak). Ez számításaink szerint bármilyen kezdőállapotra igaz. Így a diszkrét bázist tekintve a dipólmomentum operátorok komponenseinek a szimmetria tulajdonságai és a forgóhullámú közelítés érvényessége vezet oda, hogy az (1) egyenletben részletezett két típusú gerjesztés kvalitatívan különböző felharmonikus spektrumhoz vezet. Ennek az eredménynek az alátámasztása részben numerikus számításokon alapul, jelenleg folyó kutatásaink arra irányulnak, hogy a szimmetrián alapuló effektusok analitikus részleteit felderítsük.

4. Összefoglalás

A fentiekben azt a kérdést jártuk körül, hogy az atomokon történő magasfelharmonikus-keltés polarizációfüggése hogyan jelenik meg egy olyan modellben, ahol a dinamikát nem közvetlenül a valós térben írjuk le. Diszkrét, de a szórt állapotokat is tartalmazó bázist alkalmazva megmutattuk,

hogy a jelenség létrejöttében kulcsszerepet játszanak a dipólmomentum mátrixelemek fázisai. Tágabb értelemben ezen mátrixelemek térbeli, és a gerjesztő impulzus időbeli szimmetriájának az együttese határozza meg a felharmonikus komponensek megjelenését.

Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben.**

Munkánkat támogatták továbbá TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok. Magát az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja.

Irodalom

- [1] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B 4, 595 (1987).
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.4.000595>
- [2] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 21, L31 (1988).
<https://doi.org/10.1088/0953-4075/21/3/001>
- [3] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994>
- [4] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A 49, 2117 (1994).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>
- [5] G. Sansone Phys. Rev. A 79, 053410 (2009)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.79.053410>
- [6] H. Ruf, C. Handschin, R. Cireasa, N. Thiré, A. Ferré, S. Petit, D. Descamps, E. Mével, E. Constant, V. Blanchet, B. Fabre, and Y. Mairesse, Phys. Rev. Lett. 110, 083902 (2013).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.083902>
- [7] B. Bódi, M. Aladi, P. Rácz, I. B. Földes, and P. Dombi, Opt. Express 27, 26721 (2019).
<https://doi.org/10.1364/OE.27.026721>
- [8] O. Goscinski, Advances In Quantum Chemistry, volume 41, (2002)
[https://doi.org/10.1016/S0065-3276\(02\)41046-5](https://doi.org/10.1016/S0065-3276(02)41046-5)
- [9] S. Jiang, H. Wei, J. Chen, C. Yu, R. Lu és C. D. Lin, Phys. Rev. A 96 053850 (2017).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.96.053850>
- [10] P. Meystre, M. Sargent III, Elements of Quantum Optics (Springer, 2007.)
<https://doi.org/10.1007/978-3-540-74211-1>

LASER PARTICLE ACCELERATION TECHNOLOGIES: PROBE LASER BEAM DIAGNOSTICS OF EXTENDED PLASMAS

**Miklós Á. Kedves, Márk Aladi, József S. Bakos, Gábor Demeter, Gagik Djotyan,
Péter Ignácz, Béla Ráczkevi, Zsuzsa Sörlei, János Szigeti**

*Wigner Research Centre for Physics
Konkoly-Thege Miklós út 29-33, H-1121 Budapest, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.17>

Abstract

As plasma-based particle acceleration techniques are becoming intensely developed, the diagnostic tools for the study of the generation and properties of plasmas are increasingly important. We present results on the investigation of probe laser beam diagnostics for the measurement of the plasma density in extended spatial regions. Such extended plasmas are used in particle driven plasma wakefield acceleration experiments for the acceleration of electron/positron bunches to as high as TeV energies in the foreseeable future.

1 Introduction

Novel particle acceleration schemes based on plasma media have been under intense studies for some decades since the introduction of the concept of plasma wakefield acceleration [1]. Practical realization was made possible by the advent of chirped pulse amplification of ultrashort laser pulses resulting in multiterawatt intensities in a pulse [2]. Beside the laser particle acceleration technique other schemes have also been pursued utilizing the enormous electric fields generated by the charge separation in the plasma. One of the very promising projects is the Advanced Proton Driven Plasma Wakefield Acceleration Experiment (AWAKE) at CERN which utilizes the energetic proton beams from the Super Proton Synchrotron (SPS) for the acceleration of electron bunches in a plasma medium [3,4]. These methods are especially attractive because of the huge accelerating potential that can be several orders of magnitude higher than in conventional accelerators, making it feasible to construct compact accelerators of significantly smaller size and cost. The AWAKE group demonstrated the acceleration of witness electron bunches to 2 GeV in 2018 [5].

Instead of the multi-km long structures, the AWAKE device incorporates a 10 m long plasma chamber where acceleration actually takes place. However, because of the strict requirements for plasma uniformity, this plasma is enclosed in the completely closed vessel where hardly any access can be open for plasma diagnostics. Our group is working on the development of different diagnostic techniques to characterize the plasma generated in extended spatial regions. We have constructed an experimental arrangement containing a 75 cm long rubidium vapor cell where plasma can be generated by a Ti-sapphire laser pulse, and optical observations can be carried out either longitudinally or in transverse directions at several locations along the plasma column.

The study of the propagation of intense ultrashort laser pulses in a medium and its nonlinear effects (self-focusing, filamentation) is very interesting and important in itself, and has been carried out for several decades [6]. However, very little is known about the special case when the ionizing laser pulse is resonant with a single-photon transition from the ground state of the gaseous target material. In the particular experiments of the AWAKE project and also our investigations rubidium vapor is used for generating the plasma with the pulses of a Ti-sapphire laser, which is in direct resonance with

the Rb atom. Therefore, our group is also engaged in developing theoretical models and computer simulations for the better understanding of these nonlinear pulse propagation phenomena [7]. In this paper some of the results and observations of our probe beam absorption experiments and computer simulations are summarized.

2 Experimental arrangement

The extended plasma column is generated in a 75 cm long glass cell filled with rubidium atomic vapor by the intense pulses of a Ti-sapphire laser system (Coherent Hydra). Rubidium is used as the target material because of its low first and high second ionization potential, which enables a robust single photoionization process. The glass cell is heated by an oven, placed in a vacuum chamber for good heat insulation. Maximum rubidium atomic density of about 10^{15}cm^{-3} can be generated this way. The vapor is irradiated by the laser pulses in the longitudinal direction with the unfocused beam of the Hydra system. The maximum pulse energy of the laser is 30 mJ, the pulse duration is 40 fs, and the beam diameter is about 12 mm. However, in order to avoid self-focusing of these intense pulses in air, lower pulse energies of up to 15 mJ were used, and the pulse length was increased to about 300 fs by varying the pulse compression in the grating compressor of the laser. This resulted in maximum pulse intensities around $10^{11}\text{W}/\text{cm}^2$ and frequency-swept (chirped) pulses rather than transform limited ones.

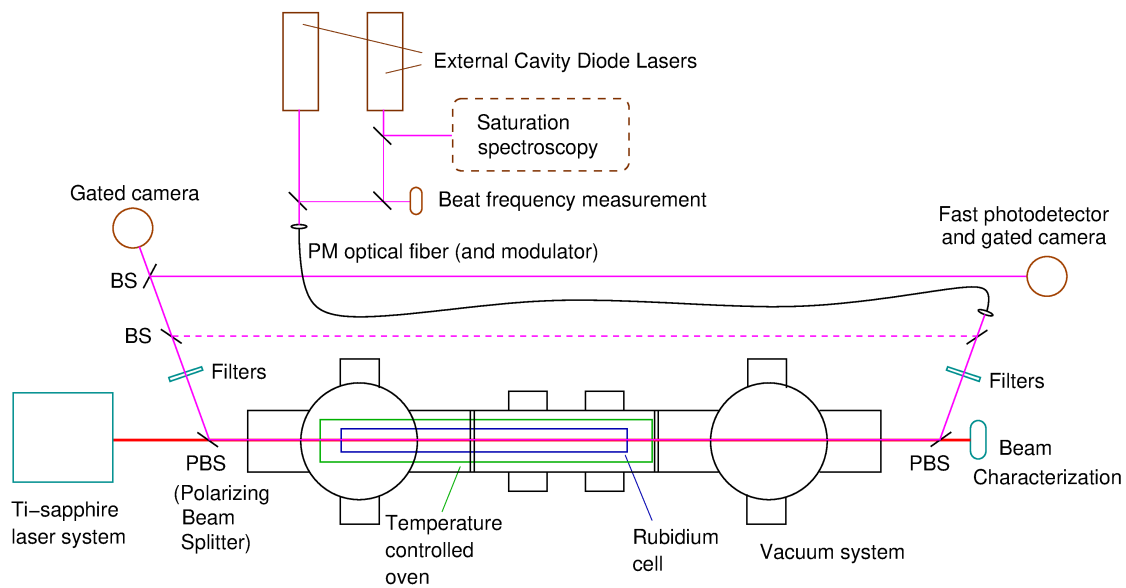


Figure 1: *Experimental arrangement of the longitudinal probe beam diagnostic measurement on Rb plasma.*

The ionization fraction of the rubidium vapor was determined by measuring the absorption of a near-resonant probe laser beam transmitted through the plasma column in the longitudinal direction opposite to the propagation of the ionizing laser pulse. The probe laser is an external cavity diode laser (ECDL; New Focus TLB-6712) detuned from the atomic resonance line of rubidium by several GHz. The frequency of the probe laser was continuously monitored by detecting its beat frequency with another ECDL that was stabilized to an atomic transition. The attenuation of the probe laser beam was measured either by a fast (4.5 GHz) photodiode (New Focus 1591) or gated and intensified cameras with sub-microsecond exposure times. In some series of experiments a Mach-Zehnder interferometer arrangement was formed by inserting a reference probe laser path, and the interference of the two beams was registered. Transverse absorption measurements have also been carried out, but these are not treated here.

The details of the determination of the ionization fraction will be published in a separate paper. Briefly, the transmitted power of the probe laser was measured in plasma (P_{plas}) and in atomic vapor

(P_{vap}) (i.e. with and without the ionizing pulse), and also in vacuum (more precisely, in the residual vapor at room temperature: P_{res}). Using the relative transmission ratios the ionization fraction can be calculated from the following formula:

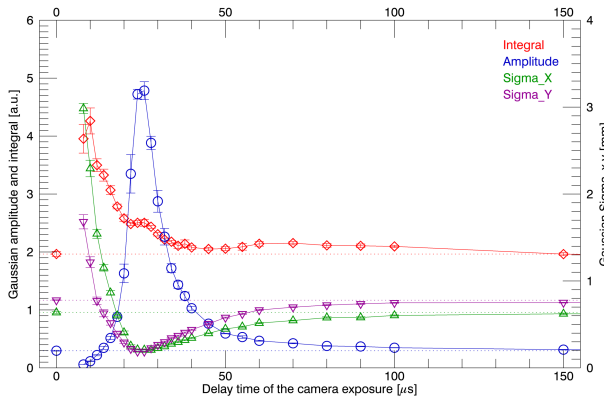
$$\rho = \frac{\ln\left(\frac{P_{plas}}{P_{vap}}\right)}{\ln\left(\frac{P_{res}}{P_{vap}}\right)}.$$

At the maximum ionizing pulse intensity of 10^{11} W/cm^2 with negative frequency chirp, a maximum ionization fraction of about 40% was obtained. In our earlier experiments with 2 mJ, 40 fs pulses the interference signal of the probe laser beams was analyzed, and ionization fraction values around 10% were obtained [8].

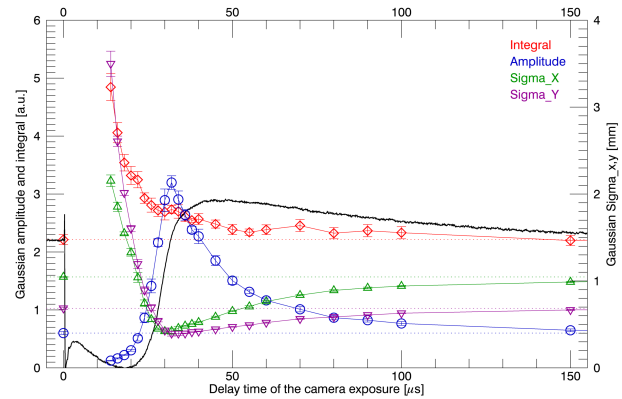
3 Discussion of the experimental observations

3.1 Focusing/defocusing of the probe laser beam

In our first series of experiments we used a fiber-coupled fast photodetector for the detection of the transmitted probe beam power with high temporal resolution. Since the absorption measurement can detect the density of the (ground state) atomic species in the cell, the transmitted power is expected to increase after the ionizing laser pulse. However, we observed serious decrease in the measured signal. This unexpected behaviour was explained by the assumption that the probe beam was defocused by the radial variation of the refractive index in the plasma column, forming a lens in the middle of the laser beam path. This would then focus the probe laser beam depending on the laser frequency and the density distribution of the residual atomic species.



(a) Camera closer to the plasma cell



(b) Camera farther from the plasma cell

Figure 2: The dependence of the Gaussian beam parameters on the delay time of the camera exposure. The black line in (b) shows the signal of the fast photodiode at the same location.

In order to check this assumption the transmitted probe beam was detected with gated cameras at two different distances from the plasma column. The probe laser frequency was tuned above the rubidium resonance lines by 4 GHz. The recorded images were evaluated by fitting 2-dimensional Gaussian-distributions to the data. The transmitted beam power can be characterized by the integral of the obtained Gaussian distribution, which is proportional to the product of the amplitude and the σ_x and σ_y width parameters: $I = 2\pi Amp \cdot \sigma_x \sigma_y$. In the first few microseconds after plasma creation the probe beam is strongly blown up and scattered out of the camera sensor area, therefore no data can be evaluated in this delay region. The results of the fitting procedure can be seen in Figure 2, where the decrease in the Gaussian sigma parameters indicates the focusing of the probe beam. At

zero delay time the probe beam parameters without ionizing laser pulse are depicted, and the dotted lines represent the level to which the values return with plasma relaxation. It can also be seen that the minimum beam size is observed at a longer delay setting on the camera farther from the plasma, that is, the focal distance of the relaxing plasma column is getting longer with time after the ionization.

The integral of the calculated Gaussian distribution characterizes the transmitted probe laser beam power, and the ionization fraction can be calculated from the increase of this value in the plasma with respect to the vapor. In Figure 2b the continuous black line shows the signal of the fast photodetector that was placed close to the location of the second camera. It can be clearly seen that the photodetector signal cannot represent the transmitted probe laser power as the beam is defocused and the coupling into the detector fiber is strongly reduced.

Figure 3 shows the obtained beam spot sizes at different probe laser detuning directions. In the case of a positive detuning (+4 GHz from the uppermost hyperfine level of the rubidium atom), the refractive index of the atomic vapor is below one, and the refractive index of the plasma is very close to unity. Therefore, the refractive index is higher in the middle of the plasma column, and a positive lens is formed. This focuses the probe laser beam with a short focal length at the beginning of the plasma relaxation, and then the focal point is shifted farther away. In the case of negative detunings (-4 GHz from the lowermost hyperfine level), however, a negative lens is created, and the probe beam is defocused all the way along the plasma relaxation. The lens formed in the extended spatial region can be described as a Graded Index (GRIN) lens. Plasma-based GRIN lenses have also been observed to generate a ring-shaped beam distribution after propagation in the medium [9].

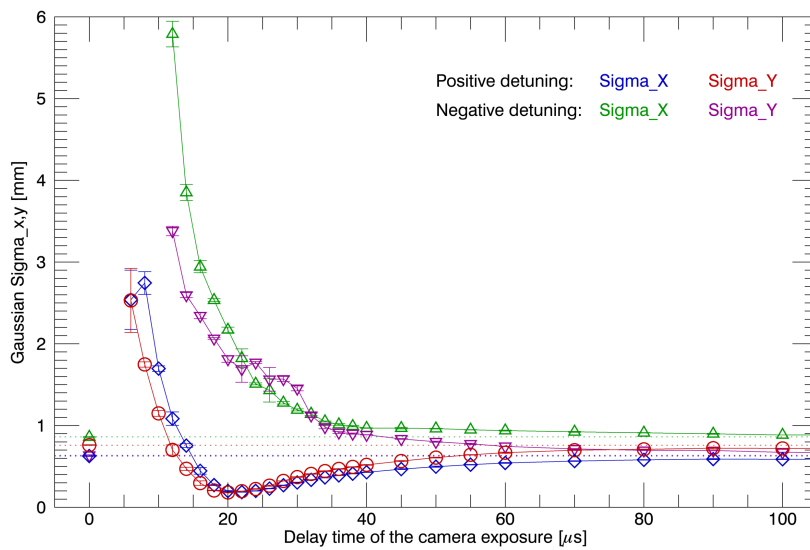


Figure 3: *Dependence of the transmitted probe beam spot sizes on the exposure delay at positive and negative detuning values.*

3.2 Effect of the chirp direction of the ionizing laser

Since we were working with chirped pulses for the creation of the plasma, we have also examined the dependence of the ionization efficiency of the laser pulse on the direction of the frequency sweep. In Figure 4 different diagnostic signals can be seen which were measured with different chirp directions with a positive probe laser beam detuning. In the case of negative frequency chirp, the interference signal detected by the fast photodiode shows more oscillations indicating a larger phase shift, which also corresponds to a bigger density variation [8]. The Gaussian integral and spot size parameters measured with the gated camera also display a more intense ionization effect. Although the ionization fraction cannot be easily deduced from these data for the series with positive chirp, it can clearly be

seen that there is a marked difference between the two cases, and the effect of the ionizing laser pulse on the rubidium vapor in the case of the negative chirp is much more pronounced, suggesting that the ionization efficiency is also higher. In order to study this dependence systematically we are planning measurements of the frequency evolution of the ionizing laser pulse using a Frequency Resolved Optical Gating (FROG) instrument.

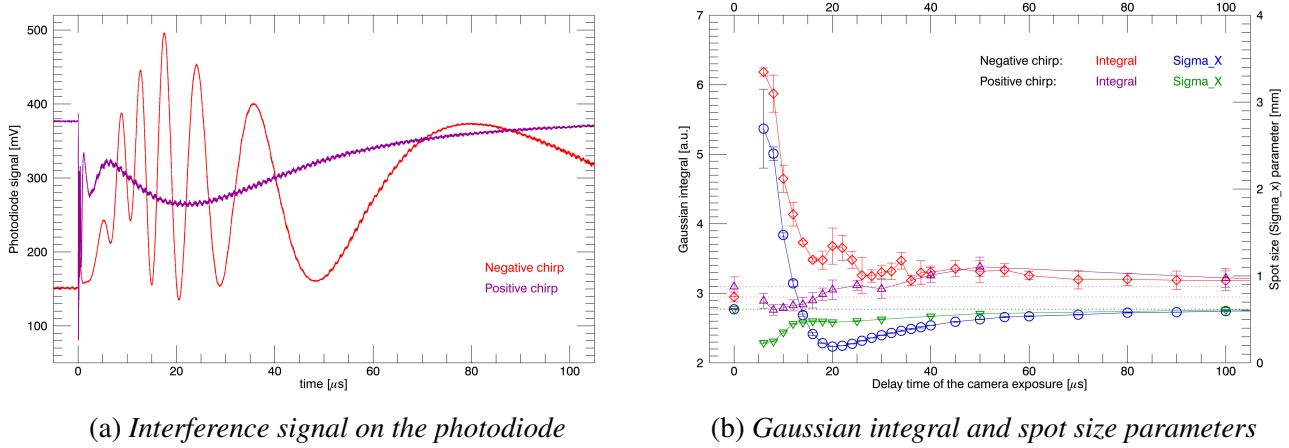


Figure 4: Interference signal (a) and Gaussian integral and spot size parameters (b) for different chirp directions of the ionizing laser pulse.

4 Simulation of the propagation of resonant ionizing laser pulses

A theoretical model was developed to describe the propagation of ionizing, resonant laser pulses in rubidium vapor. The model follows the concept of [7], but the atomic model is more complex, utilizing 10 atomic bound state levels. Atomic polarization is calculated from the time-dependent probability amplitudes of the Schrödinger equation and a first order propagation equation is written for the envelope of the laser pulse in frequency space. Ionization is included as a set of phenomenological loss terms in the Schrödinger equation. Calculations show that the laser pulse experiences strong self-focusing in the nonlinear medium and given sufficient energy, a plasma channel with very close to 100 % ionization is formed.

5 Summary

Diagnostic methods for the measurement of the parameters of extended plasma columns are being developed. The plasma density is determined using longitudinal probe laser absorption where the focusing and defocusing of the probe laser beam was observed. It should be noted that the plasma was not completely ionized in our case, and therefore the radial distribution of the residual atomic vapor acts as a lens. The same diagnostics have also been used in the AWAKE experimental apparatus, where the ionization of the gas can be complete due to the significantly higher laser intensity. Therefore much less significant focusing effects were observed there. The data are under evaluation and will be published soon, and also further development work of the method is being carried out.

The ionization efficiency of the frequency chirped laser pulses was observed to depend on the direction of the frequency sweep of the ionizing laser. The efficiency was higher for negatively chirped laser pulses. In order to study this effect the systematic measurement of the frequency chirp of the ionizing laser pulse is necessary. In the following a series of experiments is planned using a FROG instrument for the precise determination of the spectral phase characteristics of the chirped laser pulses.

A relatively simple theoretical model has been developed for computing the response of the medium in the presence of strong resonant nonlinearity and ionization. A marked difference has been found in comparison with the nonresonant filamentation processes.

6 Acknowledgments

We would like to thank Joshua T. Moody, Patric Muggli and the AWAKE team for the fruitful collaboration. The support to our research project from the NKFIH under the programme “NEMZETKÖZI KUTATÁSI INFRASTRUKTÚRÁK KIHASZNÁLTSÁGÁNAK TÁMOGATÁSA 2019-2.1.6-NEMZ_KI-2019-00004”, as well as from Péter Lévai is gratefully acknowledged.

7 References

- [1] T. Tajima and J. M. Dawson, Phys. Rev. Lett. **43**, 267 (1979).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.43.267>
- [2] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot and G. Mourou, IEEE J. Quantum Electron, A **24**, 398 (1988).
<https://doi.org/10.1109/3.137>
- [3] A. Caldwell et al., Nulc. Instr. Methods A **829**, 3 (2016).
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.12.050>
- [4] E. Gschwendtner et al., Nulc. Instr. Methods A **829**, 76 (2016).
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.02.026>
- [5] E. Adli et al., Nature **561**, 363 (2018).
<https://doi.org/10.1038/s41586-018-0485-4>
- [6] A. Couairon and A. Mysyrowicz, Physics Reports **441**, 47 (2007).
<https://doi.org/10.1016/j.physrep.2006.12.005>
- [7] G. Demeter, Phys. Rev. A **99**, 063423 (2019).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.063423>
- [8] G. P. Djotyan et al., Nucl. Instr. Methods A **884**, 25 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.12.004>
- [9] Chao Tan et al. J. Opt. **15** 125202 (2013).
<https://doi.org/10.1088/2040-8978/15/12/125202>

CITOKRÓMOK SZEREPE FOTOSZINTETIZÁLÓ BÍBORBAKTÉRIUMOKBAN

¹Kis Mariann, ²James Smart és ¹Maróti Péter

¹Szegedi Tudományegyetem, Orvosi Fizikai és Orvosi Informatikai Intézet

²University of Tennessee at Martin, Department of Biological Sciences

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.18>

1. Bevezetés

A fotoszintézis során a napfényből érkező fotonok energiája stabil kémiai energiává alakul a gerjesztés, energiaátadás, elektronátadás és enzimatis lépések során. Ezek a folyamatok a membránfehérje komplexekben mennek végbe, és gyakran a fehérjékben található fématomhoz kapcsolódnak. Az elektronszállításban a metalloproteinek egyik fő osztályába tartozó hem tartalmú citokróm fehérjék redox-reakciókon keresztül vesznek részt.

A fotoszintetizáló bíborbaktériumokban a citokrómok akár a membránban, fehérjekomplexekhez kapcsoltnak, akár szabadon, a periplazmában vízzoldékony fehérjeként is előfordulnak. A *Rhodospseudomonas (Rps.) viridis* és a *Rubrivia (Rvx.) gelatinosus* törzsek a reakciócentrum (RC) membránfehérjéhez kapcsolt citokróm alegységet is tartalmaznak, míg a *Rhodobacter (Rba.) sphaeroides* vagy a *Rhodospirillum (Rsp.) rubrum* csak vízzoldékony citokrómokkal rendelkezik [1].

A fotoszintézis elsődleges reakcióit egy foton abszorpciója váltja ki, majd egy membránon keresztüli töltésszétválasztás következik az elsődleges elektrondonor (P , bakterioklorofill dimer), valamint az elsődleges és másodlagos kinon akceptorok (Q_A és Q_B) között. Az oxidált elsődleges donor, a P^+ , másodlagos elektrondonorja lehet RC-hoz kötött citokróm alegység (pl: citokróm c) vagy egy vízzoldékony periplazmikus elektrondozó (citokróm c_2) [2]. Ez a periplazmikus elektrondozó biztosítja a kapcsolatot a citokróm bc_1 komplex és a RC között, hogy teljes legyen a fény által kiváltott ciklikus elektrontranszfer. Hasonlóképpen hozza létre a kapcsolatot az RC-hoz kötött citokróm alegység és a citokróm bc_1 komplex között a vízzoldékony elektrondozó a periplazmában.

Az optimális fotokémiai hatékonyság érdekében a P^+ -nak a citokrómok általi redukciójának gyorsabbnak kell lennie, mint a P^+ és Q_A^- közötti töltésszétválasztás. Ez a követelmény minden olyan törzs esetében megvalósul, amelyek rendelkeznek RC-hoz kötött citokróm alegységgel, mint például a *Rps. viridis* vagy a *Rvx. gelatinosus* [3], és olyan fajok esetében is, amelyekből hiányzik a citokróm alegység, például a *Rba. sphaeroides*, ahol a P^+ -t közvetlenül a vízzoldékony citokróm c_2 redukálja [4]. A mesterségesen előállított *Rba. sphaeroides* $cycA$ citokróm mentes mutáns törzsnél [5] fiziológiás elektrondonor nem áll rendelkezésre a fényindukált P^+ redukálására, az elektron $P^+Q_B^-$ rekombinációján keresztül kerül vissza alapállapotba.

A citokrómok fény-indukált redox változásait többnyire jól nyomon lehet követni optikailag izolált rendszerekben (reakciócentrumban, kromatofórában), de intakt sejtekben ez a megfigyelés nagyon megnehezül az optikai szórás, és más sejtalkotók átlapoló abszorpciója miatt. Ebben a munkában bemutatjuk élő (feltöretlen) sejt citokróm alegységének optikai abszorpcióváltozását, és célul tűztük ki, hogy fényindukált abszorpcióváltozás és fluoreszcencia méréssel a különböző típusú citokrómokat tartalmazó, illetve citokróm mentes törzsekben az elektronátadási lépéseket összehasonlítsuk.

2. Anyagok és módszerek

Sejttenyészetek: A fotoszintetizáló bíborbaktériumok *Rba. sphaeroides* 2.4.1, $cycA$, $cyt\ c_4$ double KO és a *Rvx. gelatinosus* Siström médiumban növekednek. Egyrészt teljesen teletöltött üvegekben oxigén nélkül (fotoheterotróf és anaerob növekedés) másrészt pedig félig töltött Erlenmeyer lombikokban (fotoheterotróf és aerob növekedés). A megvilágításhoz (fotoszintetikus növekedés) 40 wattos

wolfrám szál izzókat használunk. Ezekből körülbelül 13 W/m^2 fényerősség érkezik az üvegek felszínére.

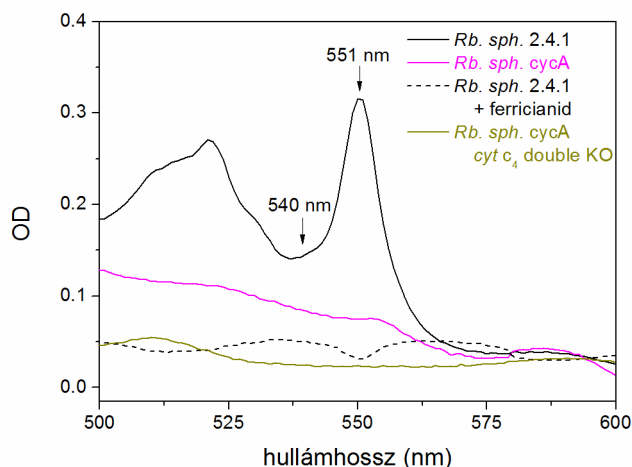
Steady-state abszorpciós spektrofotometria: A sejtek abszorpciós spektrumait a látható tartományban (500-600 nm) Unicam UV4 (kétsugaras) vagy Helios γ (egysugaras) spektrofotométerrel mértük. A spektrumot a sejtek által keltett fényszórásra korrigáltuk.

Fényindukált abszorpcióváltozás: Fényindukált abszorpcióváltozás méréséhez házilag épített spektrofotométert (Maróti és Wraight 1988), gerjesztéséhez Xe flash lámpát vagy lézerdiódát ((450 nm és 802 nm, 2 W), detektáláshoz Hamamtsu R928 típusú fotoelektron sokszorozót használtunk. A mérőfény wolfrám szál izzó. A megfelelő hullámhosszakat monokromátorokkal és szűrőkkel állítjuk be. Az oxidált bakterioklorofill dimert (P^+) 798 nm-nél, a citokróm oxidációt 551 nm-nél (referencia 540 nm) detektáljuk. Méréskor a sejtek optikai denzitását alacsonyan kell tartani (OD (808 nm) < 0.1).

Fluoreszcencia indukció: A fluoreszcencia indukció gerjesztéséhez 802 nm hullámhosszú lézer diódát használtunk, ez a hullámhossz megfelel a LH2 antenna 800 nm-es abszorpciós sávjának, így optimális a megvilágítás. A detektálást a gerjesztés irányára merőlegesen elhelyezett lavina fotodiódával végeztük. A lézerfény szórásától a detektort 850 nm felett áteresztő szűrővel védtük.

3. Eredmények és megvitatásuk

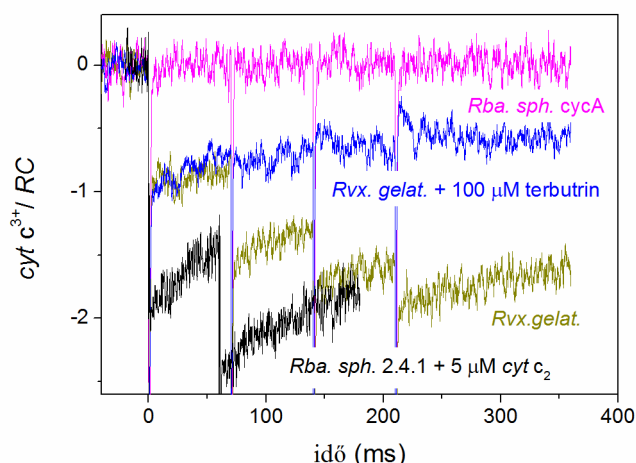
A steady-state abszorpciós spektrumokat (1. ábra) a növekedés exponenciális fázisában lévő sejtekből készült kromatofórákon vettük fel. A kromatofóra előnye, hogy a sejtfalat eltávolítjuk a preparálás során, így csak a belső membránrendszert (fotoszintetikus apparátust) használjuk fel, ezért a sejtek alakjából fakadó szórással nem kell számolni. A citokrómok abszorpciós maximumát 550 nm körül mérjük. Az 1. ábrán látható *Rba. sphaeroides* 2.4.1 redukált állapotú citokróm sávja 551 nm-es maximummal, amelyet ferricianid hozzáadásával oxidálunk, ennek hatására a csúcs jóval kisebb lesz, és átfordul. A vad típusú törzsből készült citokróm mentes mutánsok spektrumai nem tartalmazzák az 551 nm-es sávot.



1. ábra: Steady-state abszorpciós spektrumok *Rhodospirillum rubrum* (*Rb. sph.*) *sphaeroides* 2.4.1 vad típusú és citokróm mentes mutáns (*cycA* és *cyt c4* double KO) törzseiből preparált kromatofórák citokróm sávjairól. (—) redukált citokróm spektrum, nyilakkal jelölve az 551 nm-es citokróm csúcs és az 540 nm-nél lévő P^+ izoszbesztikus pontja, (---) ferricianiddal oxidált citokróm spektruma, (—) és (—) citokróm mentes sávok.

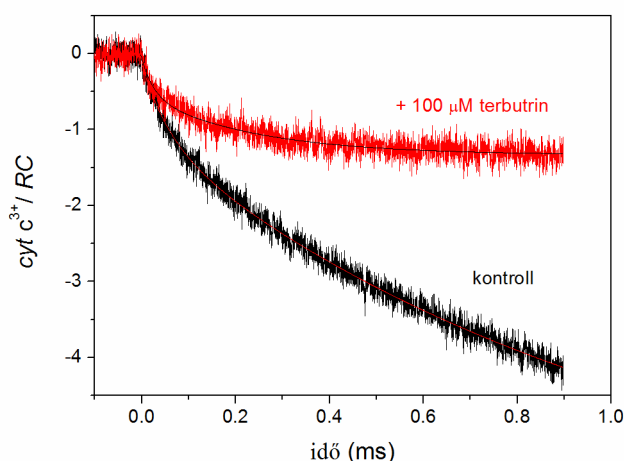
Az egyes telítési fényfelvillanások által kiváltott citokróm ($\text{cit } c^{3+}/\text{cit } c^{2+}$) abszorpcióváltozását 551 nm-es hullámhosszon folytonosan követni tudjuk (2. ábra). Mivel a P^+ -nak 540 nm-nél izoszbesztikus pontja van (1. ábra), ezért a tényleges citokróm abszorpcióváltozást az 551 nm-nél és 540 nm-nél felvett különbségi kinetika adja. Az oxidált citokróm lépcsőket kromatofórákon, négy, 60 ms-onként egymást követő flash gerjesztéssel vettük fel. A szinteket ($\text{cit } c^{3+} / \text{RC}$) a terbutrinnal kezelt minta maximumához viszonyítottuk. A terbutrin egy Q_B helyre bekötődő interkinon elektrontranszfer gátló ($Q_A^- Q_B \rightarrow Q_A Q_B^-$), amely a rendszernek csak egyszeri átfordulását engedi meg.

A citokróm alegységet is tartalmazó *Rvx. gelatinosus* a négy flash hatására kettő szintet emelkedett ($2 \text{ cyt } c^{3+} / \text{RC}$). Ehhez a mintához $100 \mu\text{M}$ adtunk, ezért a szintje nem emelkedett egynél magasabbra a flashek hatására. A vízdékony mobilis citokróm c_2 -öt tartalmazó *Rba. sphaeroides* 2.4.1 mintához $5 \mu\text{M}$ vízdékony lószívből izolált citokrómot adtunk, amely hatására két flash alatt elérte azt a szintet, amit a citokróm alegységet is tartalmazó *Rvx. gelatinosus* adott. A citokróm mentes mutáns törzsnél nem kaptunk jelet.



2. ábra: Különböző törzseken mért. flash-indukált abszorpcióváltozás, citokróm oxidáció (551 nm (ref. 540 nm)). A flash-eket 60 ms-onként ismételve. (—) *Rba. sphaeroides* + $5 \mu\text{M}$ lószív citokróm c_2 , (—) *Rba. sphaeroides* cycA mutáns törzs, (—) *Rvx. gelatinosus*, (—) *Rvx. gelatinosus* + $100 \mu\text{M}$ terbutrin.

ábra). Ebben az esetben lefókuszált 802 nm-es, 2W teljesítményű lézerdíódat használtunk. A mintához itt is $100 \mu\text{M}$ terbutrint adtunk. A kinetika két jól elkülöníthető exponenciális komponenre bontható, a kontroll esetében $50 \mu\text{s}$ és 1 ms félemelkedési időekkel, a terbutrinnal kezelt mintánál pedig $25 \mu\text{s}$ és 200 ms értékekkel. A kezelt minta oxidált citokróm jele 1 ms alatt telítésbe ment, a kontroll mintáé még többszöri átfordulás után sem telítődött. A szinteket ($\text{cyt } c^{3+} / \text{RC}$) a kezelt mintára illesztett két egyenes metszéspontjából határoztuk meg (nincs ábrázolva).



3. ábra: *Rubrivivax gelatinosus* egész sejteken mért citokróm oxidáció (551 nm (ref. 540 nm)). Gerjesztés lefókuszált 2 W-os (802 nm) lézerdíóval. (—) kontroll minta, (—) terbutrinnal kezelt minta. Illesztés biexponenciális közelítéssel.

Az elektrontranszfert nem csupán a kérdéses pigmentek (itt citokróмок) abszorpció-változásaiból, hanem az antenna bakterioklorofillek fluoreszcencia-változásából is nyomon lehet követni, mert az antenna

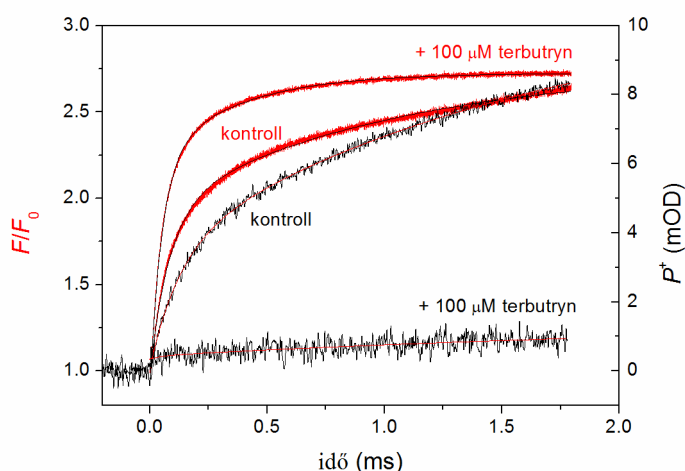
bakterioklorofill pigmentek fluoreszcencia hatásfokát a RC redox állapota és a fotoszintetikus egységek szerveződése határozza meg. A nyitott vagy zárt állapotú RC a bakterioklorofill fluoreszcencia hatásfok alacsony ill. magas értékével jellemezhető, és az átmenetük a változó fluoreszcencia megfigyelésével követhető.

Rvx. gelatinosus sejteken folyamatos lézerdíó gerjesztéssel a citokróm oxidációjával párhuzamosan mértük az oxidált dimer abszorpcióváltozását (azaz az oxidált P, $[P^+]$ mennyiségét) és a fluoreszcencia relatív hatásfokát (4. ábra). A mérési körülmények mindhárom esetben azonosak voltak. A két exponenciális emelkedés ezeken a görbéken is megfigyelhető.

A fluoreszcencia esetében a kontroll mintánál 90 μ s és 1 ms félemelkedési időket kaptunk megegyező amplitúdókkal, a terbutrinnal kezelés hatására az értékek 50 μ s és 0,4 ms-ra változtak, illetve az első fázis amplitúdója 50 %-ról 70 %-ra nőtt. Vagyis a kezelés hatására az első, fotokémiai fázis ($P^+Q_A^-$) sebessége és amplitúdója is emelkedett, a második, lassabb fázis részesedése viszont csökkent.

A lassú fázis többszörös töltésszétválasztás eredménye lehet, mert a terbutrin számottevően csökkentette a lassú fázis amplitúdóját.

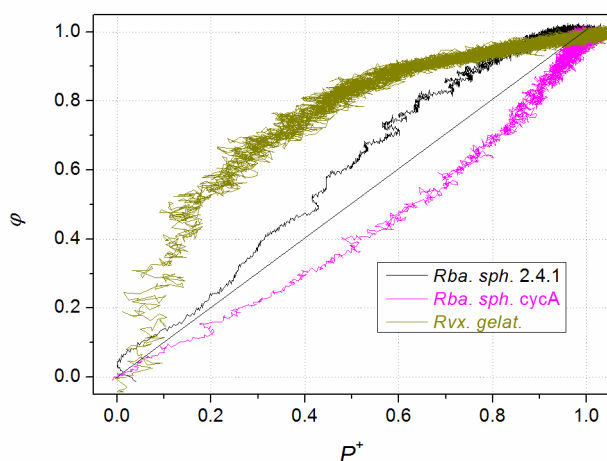
A P^+ abszorpcióváltozásánál egy 130 μ s és szintén egy 1 ms-os lassabb komponenst kaptunk. Összehasonlítva a fluoreszcenciával, a *Rvx. gelatinosus* sejteknél a fluoreszcencia kezdeti emelkedése gyorsabb volt, mint a P^+ kialakulása. Terbutrin hozzáadásával pedig szinte megszűnt a P^+ emelkedése, ugyanis a terbutrin blokkolja az elektrontranszportot a RC akceptor oldalán és a RC zárva ($P^+Q_A^-$) marad.



4. ábra: *Rubrivivax gelatinosus* egész sejteken mért bakterioklorofill fluoreszcencia indukció és 798 nm-nél mért oxidált dimer (P^+) abszorpcióváltozás. A fluoreszcencia (F/F_0) a kezdeti F_0 szintre normált. Illesztés biexponenciális közelítéssel.

A kinetikai különbségek a fluoreszcenciában és a P^+ abszorpcióváltozásában jól megfigyelhetők a különböző törzseknél. Ha a változó fluoreszcenciát (ϕ) ábrázoljuk a P^+ függvényében az idő

(mint változó paraméter) megszüntetésével, ezek az eltérések még inkább kiemelkednek a különböző törzsek tekintetében. A fentebb már említett *Rvx. gelatinosus* törzsnél a fluoreszcencia felfutása jóval gyorsabb, mint az oxidált diméré (4. ábra), ezért ebben az ábrázolásban (5. ábra) egy, alulról nézve domború görbét kapunk. A vad típusú *Rba. sphaeroides* 2.4.1 sejteknél is még domború, de itt már nincsen akkora különbség a kinetikák felfutása között. Ezekkel ellentétben a citokróm c_2 mentes mutáns törzsnél homorú görbét látunk, mert itt a P^+ kinetikailag megelőzi a fluoreszcencia változását [6].



5. ábra: Különböző törzsek változó fluoreszcenciája (ϕ) az oxidált dimer (P^+) függvényében az idő eliminálásával. A ϕ és a P^+ is a maximális értékükre normált. (—) *Rba. sphaeroides* 2.4.1, (—) *Rba. sphaeroides* cycA, (—) *Rvx. gelatinosus*.

A kísérleteinkhez olyan törzseket választottunk ki, amelyek donor oldalai lényegesen eltérők: *Rba. sphaeroides* sejtekben nincs a RC-hoz

kötött citokróm alegység, és a fotokémiailag oxidált dimért egy tőle különböző távolságra (közelre vagy távolra) elhelyezkedő vízőldékony citokróm c_2 fogja eltérő (nagyobb vagy kisebb) sebességgel

redukálni. A *cycA* törzsben genetikai konstrukcióval eltávolítottuk a citokróm *c2*-t, így az oxidált dimérnek nincs közvetlen elektron donorja, és emiatt hosszú élettartamú lesz. A *Rvx. gelatinosus* törzs RC fehérjében egy külön citokróm alegység szolgálja azt a feladatot, hogy az oxidált dimért az alegység valamelyik citokrómja gyorsan visszaredukálhassa.

Ezek a szerkezeti és redox-kinetikai különbségek tükröződnek a megfigyelt abszorpció és fluoreszcencia tulajdonságokban. Mivel ezeket intakt körülmények között is megfigyelhettük, ezért ezeknek a fluoreszcencia jellemzőknek a mérésével közvetlenül is nyomon követhetjük élő sejtekben ezeket a fotofizikai-fotokémiai lépéseket, és direkt módon következtethetünk a baktériumok fotoszintetikus aktivitásra.

Köszönetnyilvánítás

Ez a munka az EFOP-3.6.2-16-2017-0005 támogatásával készült. Köszönjük dr. Szatmári Sándor egyetemi tanárnak a mérések elvégzésére alkalmas laborhelyiség kialakításáért.

Hivatkozások

- [1] Terrance E. Meyer and Michael A. Cusanovich, Discovery and characterization of electron transfer proteins in the photosynthetic bacteria. *Photosynthesis Research* **76**: 111–126, 2003.
<https://doi.org/10.1023/A:1024910323089>
- [2] Schoepp B, Parot P, Menin L, Gaillard J, Richaud P and Verméglio A In vivo participation of a high potential iron–sulfur protein as electron donor to the photochemical reaction center of *Rubrivivax gelatinosus*. *Biochemistry* **34**: 11736–11742, 1995.
<https://doi.org/10.1021/bi00037a010>
- [3] Menin L, Yoshida M, Jaquinod M, Nagashima KVP, Matsuura K, Parot P and Verméglio A Dark aerobic growth conditions induce synthesis of a high midpoint potential cytochrome *c8* in the photosynthetic bacterium *Rubrivivax gelatinosus*. *Biochemistry* **38**: 15238–15244, 1999.
<https://doi.org/10.1021/bi991146h>
- [4] Tetreault M, Rongey SH, Feher G and Okamura MY, Interaction between cytochrome *c2* and the photosynthetic reaction center from *Rhodobacter sphaeroides*: effects of charge modification mutants on binding and electron transfer. *Biochemistry* **40**: 8452–8462, 2001.
<https://doi.org/10.1021/bi010222p>
- [5] Donohue TJ, McEwan AG, Van Doren S, Crofts AR and Kaplan S, Phenotypic and genetic characterization of cytochrome *c2* deficient mutants of *Rhodobacter sphaeroides*. *Biochemistry* **27**: 1918–1925, 1988.
<https://doi.org/10.1021/bi00406a018>
- [6] Maróti P, Kovács IA, Kis M, Smart JL, Iglói F, Correlated clusters of closed reaction centers during induction of intact cells of photosynthetic bacteria. *Scientific Reports* **10**:14012, 2020.
<https://doi.org/10.1038/s41598-020-70966-3>

EGY- ÉS TÖBBKOMPONENSŰ PLAZMONIKUS NANORÉSZECSKÉK SZIKRA-PLAZMA ALAPÚ ELŐÁLLÍTÁSA ÉS ALKALMAZÁSUK A FELÜLETERŐSÍTETT RAMAN SPEKTROSKÓPIÁBAN

Kohut Attila^{1,3}, Horváth Viktória^{1,3}, Kéri Albert^{2,3}, Kopniczky Judit¹, Hopp Béla^{1,3}, Galbács Gábor^{2,3}, Geretovszky Zsolt^{1,3}

¹Szegedi Tudományegyetem, Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék,
6720 Szeged, Dóm tér 9, Magyarország

²Szegedi Tudományegyetem, Szervetlen és Analitikai Kémiai Tanszék,
6720 Szeged, Dóm tér 7, Magyarország

³Szegedi Tudományegyetem, Interdiszciplináris Kiválósági Központ, Anyagtudomány Kutatóintézet,
6720 Szeged, Dugonics tér 13, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.19>

1. Bevezetés

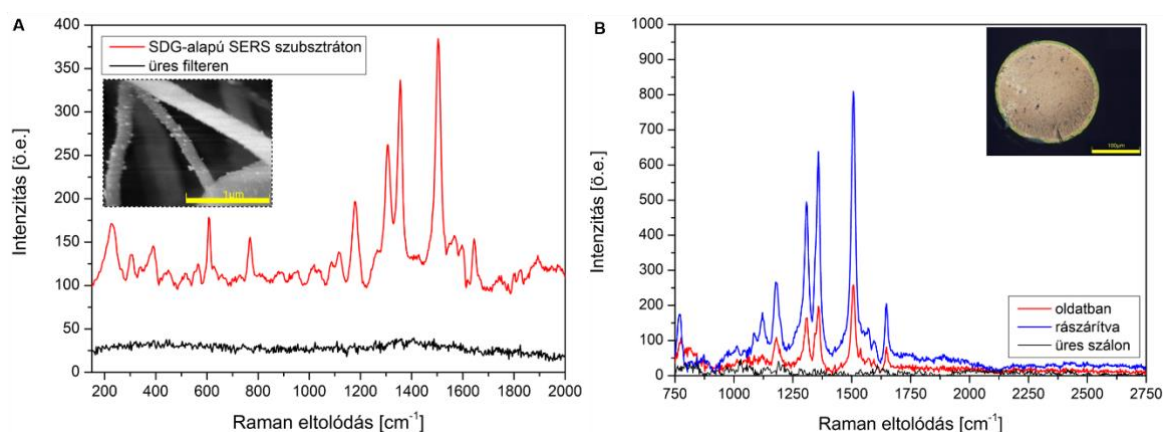
A felületerősített Raman szórás (vagy az angol megfelelőből rövidített SERS-et) először 1974-ben figyelték meg [1], mára pedig számos analitikai alkalmazás alapjául szolgál [2]. A SERS-alapú módszerek segítségével hatékonyan terjeszthetők ki a Raman spektroszkópiában rejlő, alacsony intenzitású lézeres gerjesztésen alapuló, non-destruktív molekula-azonosítási lehetőségek az alacsony koncentrációk (akár szub-ppb szint) irányába is [2,3]. Mivel a megbízhatóan magas jelerősítés eléréséhez megfelelő felületi struktúrákra van szükség, a SERS szubsztrátok tulajdonságainak javítását, illetve az újabb előállítási módszerek fejlesztését folyamatos tudományos érdeklődés övezi [2]. A SERS-szubsztrátokat jellemzően közvetlenül egy tömbi felület megmunkálásával (pl. litográfia segítségével), vagy nanorészecskék (NR-ek) alkalmazásával hozzák létre [4]. A SERS szubsztrátok tulajdonságai javításának egyik fontos eszköze a különböző anyagi rendszerek keverése. Erre jó példa az Au/Ag ötvözet NR-ek esete, amelyek remekül kombinálják az arany kiemelkedő kémiai stabilitását és az ezüst magas SERS erősítési tényezőjét [5]. Hasonló megfontolások vezetnek az oxidációnak jelentős mértékben kitett réz nemesfémekkel való keveréséhez is. Mindezek mellett a két-, vagy többkomponensű rendszerek összetételének változtatásával azok plazmon rezonancia sávja is érzékenyen hangolható, ezáltal lehetőséget biztosítva a SERS-hatás erősségének további optimalására is [6].

A nedves kémiai módszerek számos lehetőséget biztosítanak az NR-ek méretének, morfológiájának és összetételének változtatására, ugyanakkor általában különböző prekursorokat, reagenseket és oldószereket, valamint gyakran meglehetősen komplikált és időigényes szintézist igényelnek [4]. Erre alternatívát kínálhatnak a fizikai elvű NR keltési eljárások, azon belül is a gáz fázisú módszerek [7]. Ezek egyik kiemelkedő példája a szikrakisüléses NR generálás. Az eljárást kísérletileg megvalósító, ún. szikrakisüléses nanorészecske generátort (az angol rövidítésből SDG) először 1988-ban alkalmazták [8], amely repetitív, nagy áramú és feszültségű, néhány mikroszekundum hosszúságú, oszcilláló szikrák létrehozásán alapul két elektromosan vezető elektród között [9,10]. A szikrázás hatására az elektródok anyaga erodálódik és egy gázáramba kerül, ahol nukleációt, kondenzációt és koagulációt követően NR-ek keletkeznek [11]. Az eljáráshoz csak tömbi elektródokra és alkalmas vivőgázra van szükség, amelyek egyaránt elérhetők nagy tisztaságban, ezáltal a részecskék tisztasága is jól kontrollálható, valamint az egész folyamat környezetbarátta tehető [12]. A szikra-alapú NR keltés egyik további fontos előnye, hogy segítségével egy adott generátorban, pusztán az elektródok anyagának változtatásával, illetve kombinálásával többkomponensű részecskék is előállíthatók [9], akár tömbi fázisban nem keveredő anyagokból is [13].

A fentiekből jól látható, hogy az SDG-k ígéretes platformot biztosítanak nagy tisztaságú, kontrollált összetételű plazmonikus NR-ek SERS-célú előállításához. Ugyanakkor a gyakorlati alkalmazásokhoz szükséges SERS-szubsztrátok létrehozása a generált részecskék hatékony leválasztását is igényli. Munkánkban megmutatjuk, hogy az SDG-ben generált Au, Ag, és Au/Ag NR-ek segítségével olcsón, egyszerűen, egy lépésben hozhatók létre sokoldalú SERS-szubsztrátok közönséges üveg mikroszálás szűrők és optikai szálak felszínén egyaránt. Bemutatjuk a részecskék közvetlenül az aeroszol fázisból történő leválasztására alkalmazott eljárásokat, illetve megvizsgáljuk a SERS-szubsztrátok erősítési tényezőjének hangolási lehetőségeit a részecskék összetétele, valamint a leválasztási idő függvényeként.

2. Eredmények

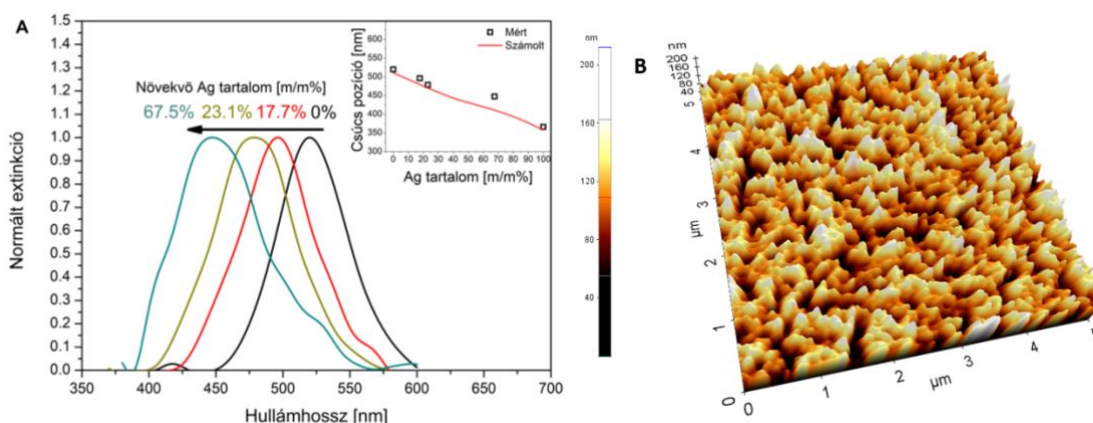
Az NR-ek előállításához használt SDG alapja egy gáztömör kamra, amelyben áramló gázban (kísérleteinkben argonban) keltünk nagyfeszültségű és -áramú, néhány mikroszekundum hosszúságú, oszcilláló szikrakisüléseket két elektród között. A szikrázás hatására az elektródokból erodálódott anyag biztosítja a keletkező NR-ek anyagát. A részecskék anyaga, illetve összetétele az alkalmazott elektródok anyagának változtatásával kontrollálható. Kísérleteinkben arany, ezüst, illetve 50 m/m%-os arany/ezüst ötvözet elektródokat alkalmaztunk különböző kombinációkban. A kísérleti rendszer részletes leírása megtalálható korábbi publikációinkban [14,15], itt csak az aktuális mérésekben használt néhány kulcselem főbb paramétereit emeljük ki. Kísérleteink egyik részében az SDG-ben előállított, csökkenecés hőkezeléssel 920°C-on kompaktált Au, Ag és Au/Ag NR-eket üveg mikroszálás szűrőkön (47 mm átmérő, Whatman WHA1820047) gyűjtöttük össze, amelyeket közvetlenül, további preparáció nélkül alkalmaztunk Raman mérésekben. Emellett, demonstrálandó az eljárás alkalmazhatóságát optikai szálak SERS szenzorok kialakításában is, egy ún. alacsony nyomású impaktor módosításával optikai szálak (200/220 μm , 0,22 NA, Thorlabs FG200LEA) végére is leválasztottunk Ag részecskéket. Az elkészített szűrő- és száloptika-alapú SERS szubsztrátok aktivitásának ellenőrzését egyaránt Rodamin 6G (R6G) vizes oldata (1 μM -1 mM) Raman spektrumának mérésével végeztük el, amelyhez egy házi készítésű, 785 nm hullámhosszú gerjesztő lézert alkalmazó Raman spektroszkópot használtunk. A Raman mérések mellett az előállított részecskéket, illetve a belőlük kialakított struktúrákat indukcióval csatolt plazma tömeg spektrometriával, pásztázó elektronmikroszkópiával, atomerő-mikroszkópiával, UV-VIS spektrofotometriával, valamint optikai mikroszkópiával karakterizáltuk.



1. ábra. R6G oldat Raman spektruma SDG segítségével kialakított filter- (A) és száloptika-alapú SERS szubsztráttal (B) mérve. A grafikonokon feltüntettük a részecskéket nem tartalmazó hordozókon mért spektrumokat is (fekete görbék). A részecskéket tartalmazó filter SEM felvétele az A, míg egy részecskékkel bevont szálvég optikai mikroszkópos képe a B grafikon felső sarkaiban mutatott képeken látható.

Az 1. ábrán R6G oldat Raman spektruma látható a módszerünkkel előállított Au/Ag NR-eket tartalmazó filter- (A), valamint egy Ag NR-ekkel bevont optikai szál-alapú SERS szubsztráttal mérve (B). Amint az a részecskék jelenléte nélkül mért referencia spektrumokkal (fekete görbék) való összevetés alapján is nyilvánvaló, mindkét alkalmazott mintaelőállítási eljárás SERS-aktív struktúrákat eredményez. Az erősítési tényezőt a jól ismert formula alapján [16] nagyságrendileg 10^4 -nek becsültük, ami a szűrő-alapú szubsztrátok között átlagos, az optikai szál SERS szenzorok között pedig kiemelkedő értéknek számít [17,18]. Az eljárás egyszerűsége ellenére az elkészített SERS szubsztrátokon mért intenzitások szórása nem rosszabb, mint 30%, ami a kísérleti körülmények optimalizálásával akár 15%-ig is csökkenthető.

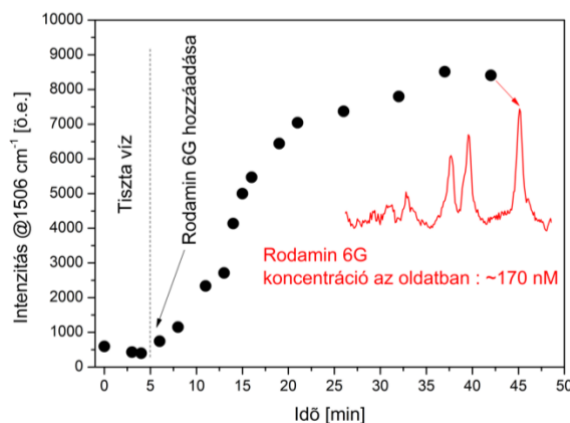
Az erősítés hangolására kézenfekvő lehetőséget biztosít a részecskék leválasztási idejének változtatása. A leválasztási idő változtatásával a mért Raman jel intenzitása közel egy nagyságrendet átölelő tartományban bizonyult hangolhatóan mindkét hordozótípus esetén. Ugyanakkor amint azt a Bevezetőben is említettük, az alkalmazott szikra plazma-alapú eljárás egyik legnagyobb előnye, hogy eltérő anyagi minőségű és/vagy összetételű elektródok egyidejű alkalmazásával – adott esetben kiegészítve a szikra elektromos tulajdonságainak változtatásával – hangolható összetételű, többkomponensű NR-ek állíthatók elő. Munkánk során tiszta arany és ezüst, valamint 50 m/m%-os arany/ezüst ötvözet elektródokat használtunk változtatva az elektródok kezdeti polaritását. Az alkalmazott, három elektródtípus párosításával hat különböző átlagos összetételű NR populációt állítottunk elő, praktikusan lefedve a tiszta arany és ezüst közötti teljes összetétel-tartományt. Amint az köztudott, az ötvözet NR-ek összetételével azok plazmon rezonancia sávjának helyzete is változtatható, ami az ezen részecskéket alkalmazó SERS-szubsztrátok hatékony hangolhatóságát eredményezi.



2. ábra. Filter-alapú SERS szubsztrátok normált extinkciós spektruma különböző Au/Ag összetételek mellett (A). A csúcsok pozíciójának mért és számolt változása az ezüst tartalom függvényében a jobb felső sarokban látható. Optikai szál végén kialakított ezüst nanostruktúra AFM mérés alapján rekonstruált háromdimenziós képe (B).

Ezt a hangolhatóságot szemlélteti a 2A. ábra, amely az általunk előállított, változó összetételű Au/Ag NR-eket tartalmazó filter-alapú SERS szubsztrátok plazmon rezonancia sávjait mutatja be. Jól látható, hogy az ötvözetekhez tartozó extinkciós spektrumok az összetétel változásával összhangban tolódnak el a tiszta aranytól a tiszta ezüst irányába. A 2A. ábra jobb felső sarkában az is látható, hogy a kísérletileg tapasztalt eltolódás a számolt trendnek is megfelel, amelyet nem aggregált, polidiszperz, gömb részecskék Mie szórásának szimulációjával kaptunk. A generált nanorészecskéket optikai szálak végére leválasztva – a leválasztási időtől függően – összefüggő, viszonylag tömör struktúrát kapunk, amint az a 2B. ábrán látható. Az AFM mérések tanúsága szerint a felületi érdesség hozzávetőleg 23 nm, az NR-ekkel bevont felszín domborzatából származó növekménye a struktúra nélküli szálfelszínhez képest mindössze 10% körüli, ami bizonyítja, hogy a tapasztalt erősítés plazmonikus eredetű. A 2B. ábra ugyanakkor az általunk alkalmazott eljárás inherens limitációját is

szemlélteti, azaz a felületi morfológia precíz kontrollálhatóságának hiányát. Mivel jellemzően utóbbi tulajdonságot szokás a SERS szubsztrátok magas fokú reprodukálható működéséhez társítani [2], így az SDG-alapú szubsztrátok kvantitatív, analitikai célú alkalmazási lehetőségei nagy valószínűséggel korlátozottak. Ugyanakkor ezen korlátokat ellensúlyozza a módszer egyszerűsége, flexibilitása és olcsósága, például a precíz morfológiai kontrollt lehetővé tevő litográfiai eljárásokkal összevetve.



3. ábra. Rodamin 6G 1506 cm^{-1} -nél található csúcsának intenzitásváltozása az idő függvényében SDG-ben előállított száloptikás SERS szubsztráttal mérve.

Amint az az eddig bemutatott eredményekből is kitűnik, az általunk alkalmazott SDG-alapú eljárással létrehozott SERS-aktív struktúrák viszonylag nagy erősítési tényezőt mutatnak – amely a részecskék összetételének változtatásán keresztül könnyedén hangolható – így ideális jelöltek lehetnek különböző szenzorikai alkalmazások számára, ahol az elsődleges szempont egy adott marker molekula szelektív detektálása. Számos esetben további előnyt jelenthet az üvegszálas szűrő is, mint hordozó, ugyanis ezáltal a mintavételezés is ugyanazon szubsztráton valósulhat meg, amelyen a Raman mérés [19]. Amennyiben a mintavételezés nem kivitelezhető, vagy nem praktikus, a száloptika-alapú szenzorok alkalmazása jelenthet megoldást. A száloptikás SERS szenzorok lehetővé teszik a lézeres gerjesztést és a detektálást végző Raman rendszer térbeli elválasztását a mérési környezettől, akár utóbbi folyamatos monitorozása mellett. A 3. ábrán egy ilyen alkalmazási lehetőséget demonstráló mérési sorozat eredményei láthatók. Egy általunk készített optikai szálas SERS szenzor egyik végét ioncserélt vízbe helyeztük, a másik végét pedig egy folyamatosan üzemelő Raman spektroszkóphoz csatlakoztattuk. Néhány perc eltelte után $1\text{ }\mu\text{M}$ koncentrációjú R6G oldatot cseppentettünk a vízbe. Amint az a 3. ábrán látható, a R6G legintenzívebb csúcsa közvetlenül a cseppentés után mérhetővé vált, amit a jel folyamatos emelkedése majd telítődése követ. E mérés sor szemlélteti, hogy az elkészített optikai szálas SERS szenzor egyaránt alkalmas a vizsgálandó molekula megjelenésének detektálására, valamint koncentráció-változásának kvalitatív követésére, amit jelen esetben a víz és a R6G oldat fokozatos, spontán keveredése okoz (keveredés után az R6G koncentrációja az oldatban 170 nM). Természetesen valós körülmények között szennyezők és egyéb zavaró tényezők is jelen lehetnek a mérés során, ám az alkalmazott eljárásban rejlő lehetőségeket ez az idealizált modellkísérlet is jól szemlélteti.

3. Összefoglalás

Munkánk során egy szikrakisüléses nanorészecske generátor (SDG) segítségével állítottunk elő arany, ezüst és arany/ezüst ötvözet nanorészecskéket és vizsgáltuk ezek alkalmazhatóságát felületerősített Raman spektroszkópiai mérésekben. A létrehozott részecskéket közvetlenül aeroszol fázisból választottuk le üveg mikroszálas filterekre, valamint egy átalakított alacsony nyomású impaktor segítségével optikai szálak végére. A filter- és optikai szál-alapú SERS szubsztrátokat Rodamin 6G oldat Raman spektrumának mérésével teszteltük, és különböző felületvizsgáló módszerekkel karakterizáltuk. Megmutattuk, hogy a filter- és optikai szálas méréseknél egyaránt 10^4 -

es nagyságrendbe eső erősítés tapasztalható, ami változó összetételű arany/ezüst ötvözet nanorészecskék előállításával, valamint a részecskék leválasztási idejének változtatásával effektíven hangolható. Demonstráltuk, hogy egy SDG-ben előállított száloptikás SERS szenzor segítségével detektálható egy teszt anyag megjelenése, és koncentrációjának változása vízben (a szub- μM tartományban). Figyelembe véve, hogy az SDG-k ma már asztali verzióban, kereskedelmi forgalomban is elérhetők [20,21], a szikra-alapú eljárásra jellemző hatékony részecske összetétel-hangolási lehetőségeket kihasználva az általunk javasolt egyszerű leválasztási módszer segítségével akár egyszerűhasználatos testreszabott, mégis olcsó SERS-szubsztrátok készíthetők.

Köszönetnyilvánítás

Jelen kutatást a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 és az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 projektek, valamint a TKP2020 Térmaterületi Kiválósági Program (azonosító szám: NKFIH-1279-2/2020) támogatta. Az egyik szerző (Kohut A.) köszöni továbbá az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-20-4 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból Finanszírozott szakmai támogatását.

Irodalom

- [1] M. Fleischmann, P. J. Hendra, and A. J. McQuillan, *Chem. Phys. Lett.* **26**, 163 (1974).
[https://doi.org/10.1016/0009-2614\(74\)85388-1](https://doi.org/10.1016/0009-2614(74)85388-1)
- [2] R. Pilot, R. Signorini, C. Durante, L. Orian, M. Bhamidipati, and L. Fabris, *Biosensors* **9**, (2019).
<https://doi.org/10.3390/bios9020057>
- [3] K. Kneipp, Y. Wang, H. Kneipp, L. T. Perelman, I. Itzkan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1667 (1997).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.1667>
- [4] P. Mosier-Boss, *Nanomaterials* **7**, 142 (2017).
<https://doi.org/10.3390/nano7060142>
- [5] M. Fan, F. J. Lai, H. L. Chou, W. T. Lu, B. J. Hwang, and A. G. Brolo, *Chem. Sci.* **4**, 509 (2013).
<https://doi.org/10.1039/C2SC21191B>
- [6] O. Olea-Mejía, M. Fernández-Mondragón, G. Rodríguez-De La Concha, and M. Camacho-López, *Appl. Surf. Sci.* **348**, 66 (2015).
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.01.075>
- [7] G. Biskos, V. Vons, C. U. Yurteri, and A. Schmidt-Ott, *KONA Powder Part. J.* **26**, 13 (2008).
<https://doi.org/10.14356/kona.26.2008006>
- [8] S. Schwyn, E. Garwin, and A. Schmidt-Ott, *J. Aerosol Sci.* **19**, 639 (1988).
[https://doi.org/10.1016/0021-8502\(88\)90215-7](https://doi.org/10.1016/0021-8502(88)90215-7)
- [9] T. V. Pfeiffer, J. Feng, and A. Schmidt-Ott, *Adv. Powder Technol.* **25**, 56 (2014).
<https://doi.org/10.1016/j.appt.2013.12.005>
- [10] A. Kohut, L. Ludvigsson, B. O. Meuller, K. Deppert, M. E. Messing, G. Galbács, and Z. Geretovszky, *Nanotechnology* **28**, 475603 (2017).
<https://doi.org/10.1088/1361-6528/aa8f84>

- [11] J. Feng, L. Huang, L. Ludvigsson, M. E. Messing, A. Maisser, G. Biskos, and A. Schmidt-Ott, *J. Phys. Chem. C* **120**, 621 (2016).
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.5b06503>
- [12] J. Feng, X. Guo, N. Ramlawi, T. V. Pfeiffer, R. Geutjens, S. Basak, H. Nirschl, G. Biskos, H. W. Zandbergen, and A. Schmidt-Ott, *J. Mater. Chem. A* **4**, 11222 (2016).
<https://doi.org/10.1039/C6TA03221D>
- [13] N. S. Tabrizi, Q. Xu, N. M. Van Der Pers, and A. Schmidt-Ott, *J. Nanoparticle Res.* **12**, 247 (2010).
<https://doi.org/10.1557/jmr.2007.0121>
- [14] A. Kohut, G. Galbács, Z. Márton, and Z. Geretovszky, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 045001 (2017).
<https://doi.org/10.1088/1361-6595/aa5c2b>
- [15] A. Kohut, L. P. Villy, T. Ajtai, Z. Geretovszky, and G. Galbács, *J. Aerosol Sci.* **118**, 59 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2018.01.011>
- [16] W. W. Yu and I. M. White, *Analyst* **137**, 1168 (2012).
<https://doi.org/10.1039/C2AN15947C>
- [17] J. A. Kim, D. J. Wales, A. J. Thompson, and G. Yang, *Adv. Opt. Mater.* **8**, 1901934 (2020).
<https://doi.org/10.1002/adom.201901934>
- [18] J. D. Weatherston, R. K. O. Seguban, D. Hunt, and H. J. Wu, *ACS Sensors* **3**, 852 (2018).
<https://doi.org/10.1021/acssensors.8b00098>
- [19] J. D. Weatherston, S. Yuan, C. V. Mashuga, and H.-J. Wu, *Sensors Actuators B Chem.* **297**, 126765 (2019).
<https://doi.org/10.1016/j.snb.2019.126765>
- [20] <https://vsparticle.com/>.
- [21] www.palas.de/en.

A VEGYES SZÓRÁS MINT PROBLÉMA LASCA PERFÚZIÓS MÉRÉSEK ESETÉN

Kondász Bence¹, Hopp Béla¹, Smausz Kolumbán Tamás¹

¹Szegedi Tudományegyetem, Optika és Kvantumelektronikai Tanszék, Szeged Dóm tér 9.,
Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.20>

1. Bevezetés

A lézer speckle kontraszt elemzésen (LASCA) alapuló perfúziómérés során a statikus szórás erősen befolyásolja a kapott áramlási értékek pontosságát. Ezen szórástípus élő szövet esetén mindig jelen van, bőr esetén pl. mozdulatlan szöveti rostok, zárványok formájában. A statikus szórás méréstorzító hatásának csökkentésére/kiküszöbölésére különböző módszereket dolgoztak ki. Ilyen pl. a vizsgált szövetek átlátszóságának növelése különböző oldatokkal való átitatásával, aminek a kivitelezése meglehetősen nehézkes. Mérés technikailag jóval egyszerűbben alkalmazhatók a statikus szórás hatását is figyelembe vevő, a mért kontraszt expozíciós idő függésén alapuló modellek, mint pl. a több expozíciós időt használó LASCA. Az alábbiakban két ilyen modell alkalmazhatóságát vetjük össze.

Az egyik modellt Parthasarathy és munkatársai [1] dolgozták ki:

$$K(T)^2 = \beta \rho^2 \frac{\tau_1^2}{2T^2} \left[\exp\left(-\frac{2T}{\tau_1}\right) - 1 + \frac{2T}{\tau_1} \right] + 4\beta \rho(1 - \rho) \frac{\tau_1^2}{T^2} \left[\exp\left(-\frac{T}{\tau_1}\right) - 1 + \frac{T}{\tau_1} \right] + v_{noise} \quad (1)$$

ahol β a mérőrendszere jellemző normalizálási faktor, $\rho = I_f / (I_f + I_s)$ a dinamikus szóródás aránya a teljes fényintenzitáshoz képest (melynek értéke tisztán statikus szórás esetén 0, tisztán dinamikus szórás esetén pedig 1), T az expozíciós míg τ speckle kép időbeli fluktuációját jellemző korrelációs idő. A v_{noise} a rendszer teljes zaja, amely tartalmazza a kamera működéséből és a lézer instabilitásából adódó zajokat is. Az áramlási sebességet a korrelációs idő reciprokával szokták jellemezni, melyet speckle kontraszt perfúziós egyégnak (SCPU) hívnak.

A másik kontraszt modell a csoportunk által korábban levezettet egyszerűbb, félig empirikus összefüggés [2]:

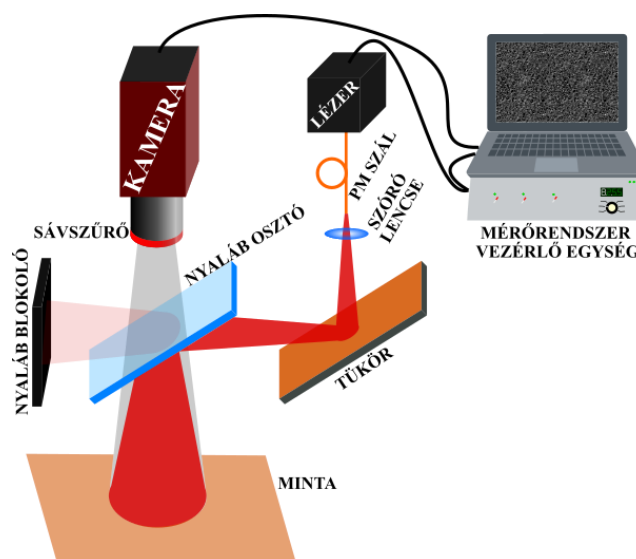
$$K(T)^2 = P_1^2 \frac{\tau_2^2}{2T^2} \left[\exp\left(\frac{-2T}{\tau_2}\right) - 1 + \frac{2T}{\tau_2} \right] + P_2^2 \quad (2)$$

ahol P_1 , P_2 empirikus illesztési paraméterek, együttesen jellemzik a vizsgált minta szórási paramétereit és a mérőrendszer normálási tényezőjét.

Ezen modellek egyike sem számol a vegyes szórás hatásával. Méréseink során azt vizsgáltuk, hogy különböző dinamikus/statikus szórási arányok hogyan befolyásolják a két modell által szolgáltatott perfúziós értékeket.

2. Kísérleti paraméterek, elrendezés

A mérések elvégzésére az 1. ábra vázolt, általunk épített és fejlesztett kísérleti elrendezést használtuk.



1. ábra A kísérleti elrendezés

A mintákat egy polarizáció tartó egymódusú optikai szálba becsatolt hőmérséklet és hullámhossz (785 nm) stabilizált lézer dióda fényével világítottuk ki. Egy polarizációs nyalábosztó lap segítségével egy koaxiális rendszert építettünk fel, így elkerülve a vizsgált mintán esetleges árnyékok kialakulását. A képek rögzítésére egy közeli infravörösben érzékenyített sávszűrővel ellátott 12 bites monokróm CMOS kamerát használtunk. A lézervezrlést, a képek rögzítését és kiértékelését az általunk LabVIEW környezetben fejlesztett programmal végeztük. A laboratóriumunkban korábban kidolgozott mérési módszert [3] használtuk a több expozíciós időt (1-75 ms mérési tartomány) használó LASCA rendszerünkben.

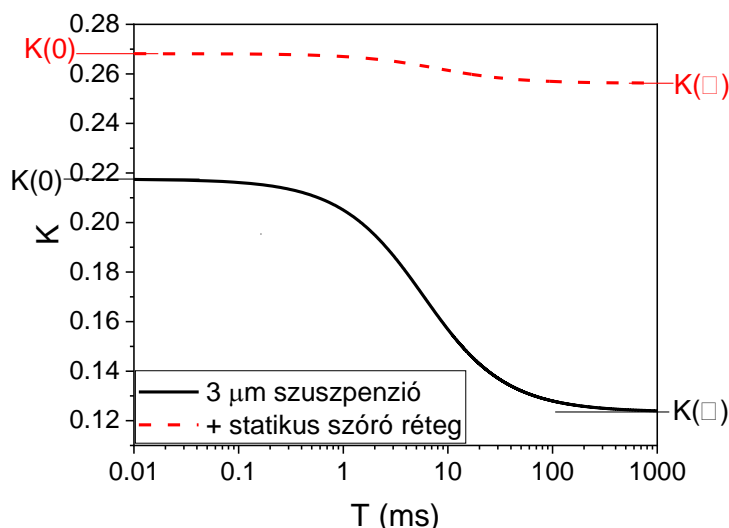
A mérések során alkalmazott szövet modellünk legfontosabb eleme a 3 μm átlagos méretű polisztrén (PS) mikrogömbökből álló szuszpenzió. A szuszpenzió egy 1 cm vastagságú küvetában volt, melyre különböző, az alkalmazott hullámhosszra áttetsző szóró rétegeket (teflon film, pauszpapír, diffúzor stb.) helyeztünk el, így imitálva az élő szöveti mérések esetének megfelelő dinamikus (áramló vörösvértest) és statikus (bőrszövet mozdulatlan alkotóelemei) fényszórási komponenseket. Az élő szövetes méréseket kézfejen lévő bőr felületén végeztük el, ugyanazokat a statikus kiegészítő szóró rétegeket használva, mint a fenti modell esetén. A méréseket egy klimatizált állandó hőmérsékleten tartót szobában végeztük el.

3. Eredmények

Ahhoz, hogy a saját számolási modellünk összevethető legyen az (1) összefüggéssel, szintén definiáltunk egy dinamikus szórási arányt. A (2) egyenlet aszimptotikus viselkedését felhasználva a következő paramétert vezetjük be:

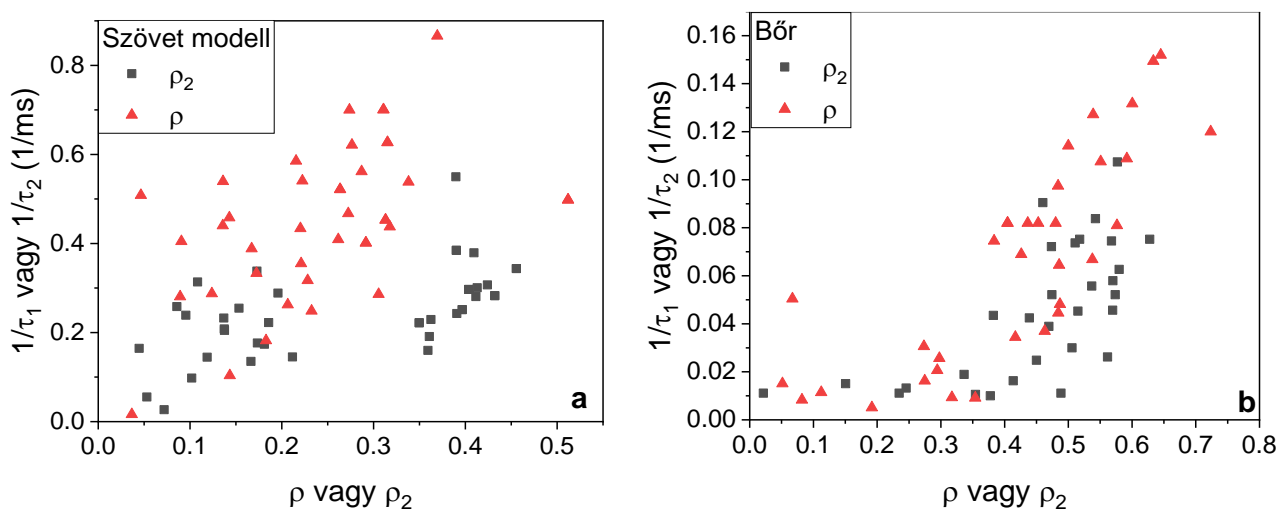
$$\rho_2 = 1 - \frac{K(\infty)}{K(0)} = 1 - \frac{P_2}{\sqrt{P_1^2 + P_2^2}} \quad (3)$$

A fenti összefüggésben $K(0)$, $K(\infty)$ a kontraszt határértéke az expozíciós idő 0-ba és ∞ -be tartása esetén, melyek a 2. ábrán lévő kontraszt görbéken grafikusán is ábrázolunk. Amint látható, egy intenzíven szóró statikus fedőréteg hatására a $K(\infty)$ jelentősen megnő, a görbe $K(0)$ - $K(\infty)$ dinamikai tartománya pedig jelentősen lecsökken. Habár matematikailag eltérő formájú, de a ρ_2 szerepe és viselkedése hasonló az (1) összefüggésben leírt dinamikus szórási arányhoz, azaz az értékük teljesen dinamikus szórás esetén 1, kizárólag mozdulatlan szórócentrumok jelenléte esetén pedig 0 lenne.



2. ábra Kontraszt görbék statikus szóró réteg jelenlétében és fedetlen mikrogömb szuszpenzió esetén

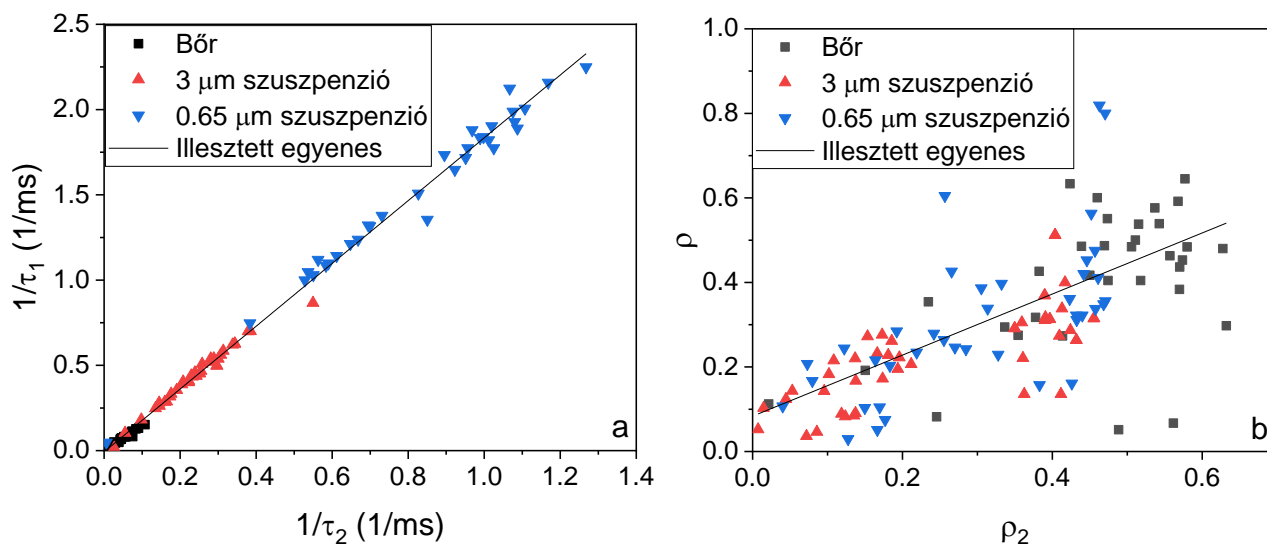
A különböző expozíciós idők esetén mért kontraszt értékekre a két modell (az (1) és (2) egyenletek) függvénye gyakorlatilag teljesen átfedve illeszkedik, csekély mértékben csak az alacsony expozíciós idejű régióban (<1 ms) térnek el egymástól, viszont az illesztésekkel kapott τ korrelációs idők tendenciózusan különböznek mind a szövet modell, mind pedig a bőrfelületen mért adatok esetén.



3. ábra A SCPU viselkedése különböző statikus szóró rétegek esetén modell- (a) és élő (b) szövet használatakor

Az illesztések alapján kapott SCPU és dinamikus hozzájárulás (ρ és ρ_2) értékeket ábrázolva mindkét számolási modell hasonlóviselkedést mutat, azaz ahogy egyre jobban szóró réteget helyezünk a szuszpenzióra, annál jobban csökkent a mért perfúziós érték (3. ábra). Az ábrán jól látható, hogy a teljesen dinamikus szórás elméletileg $\rho=\rho_2=1$ esetét nem sikerült elérni, ennek oka lehet, hogy a mérés során a mikrogömbök kitapadhattak a küvetta falán, illetve küvetta alatti fehér papírlap további statikus szóró réteggé viselkedhetett. A bőrfelületen elvégzett mérések esetén a modellek illeszkedésében hasonló tapasztaltunk, mint a szuszpenzió esetén: a ρ és ρ_2 dinamikus szórási aránnyal együtt változik a mért áramlási sebesség (3. ábra), de a tendencia némileg eltérő. Ez azzal magyarázható, hogy míg a szövet modell esetén a statikus szóróréteg fedi a szuszpenziót, bőr esetén már fedetlen állapotban is van statikus szórás úgy, hogy a szóró részek és mozgó vörösvértestek térben keverednek.

A mért áramlási sebesség tartományt egy $0,65\ \mu\text{m}$ átlagos méretű PS mikrogömbökből álló szuszpenzió alkalmazásával kibővítve jól látható (4. ábra), hogy a két modell által adott korrelációs idő értékek között egyenes arányosság áll fenn, valamint jó korrelációt mutatnak a számolt dinamikus szórási paraméterek is (4. ábra). Mind ezt azt jelenti, hogy a csoportunk által bevezetett egyszerűbb kontraszt modell (2) ugyanolyan pontosságú eredményt ad, mint a jóval bonyolultabb, nehezebben illeszthető (1) összefüggés



4. ábra A két kontraszt modell azonos jelentésű tagjai: SCPU (a) és dinamikus szórási arányok (b) közötti összefüggés

4. Összefoglalás

Szöveti modell és bőrfelület esetén is kimutattuk, hogy mindkét kontraszt modellnél a mért áramlási sebesség függ a mozdulatlan szórócentrumok jelenlététől, azaz a dinamikus szórási aránytól. Ez arra utal, hogy a vegyes szórásnak, - amikor is az egyes fotonok mozdulatlan és mozgó részeken egyaránt szóródnak - jelentős hozzájárulása van a speckle interferenciaképek kialakulásában. A két vizsgált számolási modell a statikus szórás hozzájárulásának a kiküszöbölésére lett bevezetve, azonban a vegyes szórással nem tudnak számolni. A vegyes szórás részletesebb vizsgálata céljából egy módosított szövetmodell összeállításán dolgozunk, mellyel külön-külön tudjuk kezelni az egyes komponensek hozzájárulását az interferenciakép kialakulásához.

Köszönetnyilvánítás

A kutatás EFOP-3.6.1-16-2016-00008 azonosítószámú „Intelligens élettudományi technológiák, módszertanok, alkalmazások fejlesztése és innovatív folyamatok, szolgáltatások kialakítása a szegedi tudásbázisra építve” című pályázat támogatásával készült.

Irodalom

- [1] A. B. Parthasarathy, W. J. Tom, A. Gopal, X. Zhang, and A. K. Dunn, Opt. Express **16**, 1975 (2008).
<https://doi.org/10.1364/OE.16.001975>
- [2] T. Smausz, D. Zölei, and B. Hopp, Appl. Opt. **48**, 1425 (2009).
<https://doi.org/10.1364/AO.48.001425>
- [3] D. Zölei, T. Smausz, B. Hopp, and F. Bari, J. Eur. Opt. Soc. Rapid Publ. **8**, 13053 (2013).
<https://doi.org/10.2971/jeos.2013.13053>

INVESTIGATION OF ULTRASHORT CLADDING PULSES GENERATED IN SINGLE MODE OPTICAL FIBERS

Bence M. Kovács, Zoltán L. Horváth, Attila P. Kovács

University of Szeged, Department of Optics and Quantum Electronics, Hungary, 6720, Szeged, Dóm tér 9.

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.21>

1. Introduction

Optical fibers are used to transmit light when flexible and low loss transportation is required from one place to another. With the simple principle of total internal reflection, light can propagate through the fiber's core. The violation of total internal reflection and/or the illumination of the cladding results in that the light propagates not only in the core but also in the cladding. Some applications require coupling light into the cladding. There are sensors based on optical fibers, where the coating of the fiber is removed thus its modal composition depends on the surrounding ambient, for example temperature [1-3]. Another application of cladding modes is to produce Bessel beams. A light „ring” exiting the cladding can be collimated with a lens, which creates a beam profile of a Bessel function [4, 5]. However, in most cases coupling into the cladding ought to be avoided in ultrashort laser pulse technology.

A way to investigate the modal composition of fibers is intermodal interference [6]. Here the higher order modes are interfering with the base core mode and they create spectral interference, which allows us to investigate the modes in the time domain by performing an Inverse Fast Fourier Transform (IFFT) on the measured spectra [7]. By making cross-scans of the beam, the fiber's modal composition can be characterized spatially, which is called the S^2 method [8, 9].

Single mode fibers support the propagation of only one mode in the core. To our best knowledge the propagation of ultrashort laser pulses in the cladding of single mode fibers has not been investigated yet. In this work the interference of the core and the cladding pulses is studied by the S^2 method after the collimation of the output beam from a single mode fiber.

2. Theory

A single ultrashort laser pulse has a smooth spectrum and after performing an IFFT, only one signal is present near $t = 0$ in the time domain as depicted in Figure 1. However, if there are two pulses with τ time delay between them, the spectrum becomes modulated. Evaluating the modulated spectrum with IFFT, two signals are obtained in the time domain, one is at $t = 0$, while the other one is at $t = \tau$. If there are multiple pulses, the spectrum becomes even more modulated corresponding to every pulse delayed by τ_i time, which results in multiple peaks after IFFT.

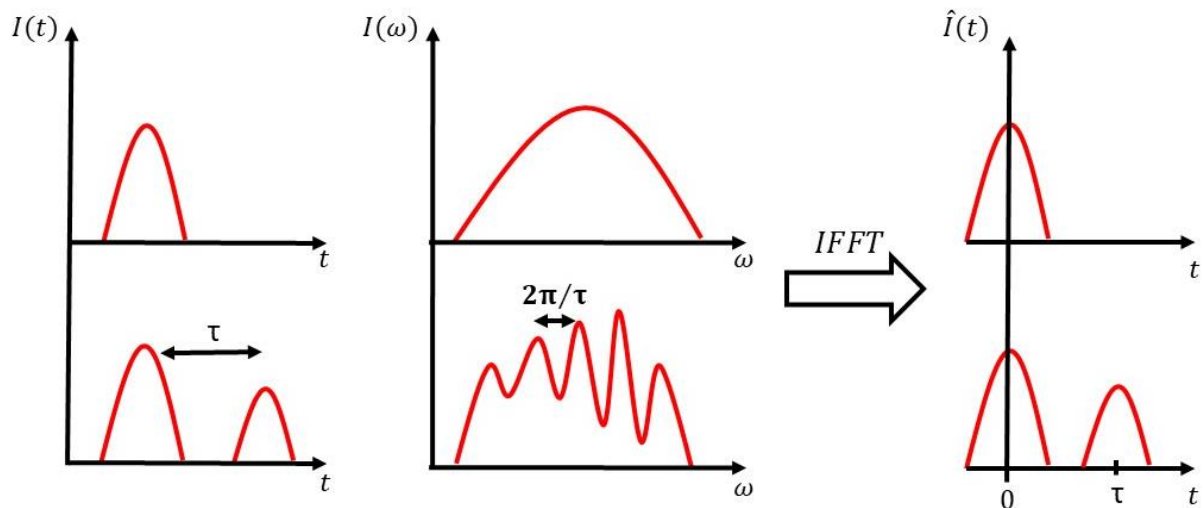


Fig. 1. Spectrum and its IFFT signal for a single laser pulse (top) and for two pulses with a time delay τ (bottom).

In our case the two pulses interfering with each other are the core pulse and the cladding pulse. To satisfy the total internal reflection, the refractive index of the material of the cladding is smaller than the core's refractive index. As a result, any pulse entering the cladding propagates faster than the core pulse and a time delay between the core and cladding pulses exiting the fiber is produced, which results in spectral interference. Figure 2 shows how the cladding pulse (red curves) interferes with the core pulse (blue curves). Due to cylindrical symmetry the intensity of the interference is highest along the optical axis. There can be interference at other spatial points as well, but with lower intensity.

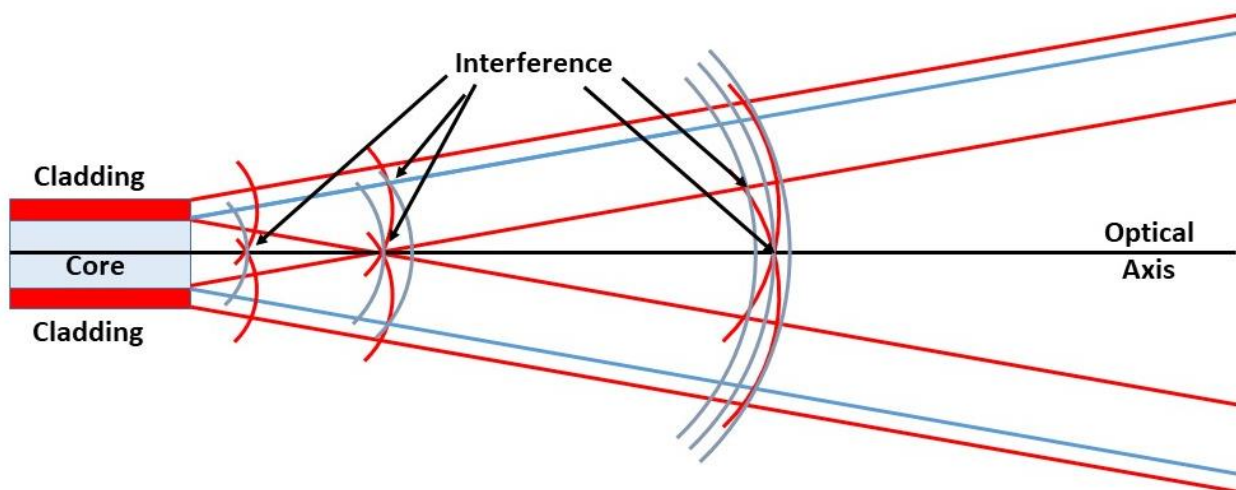


Fig. 2. Illustration of the interference of cladding and core pulses.

3. Experimental setup

In Figure 3 the schematic of the experimental setup can be seen.

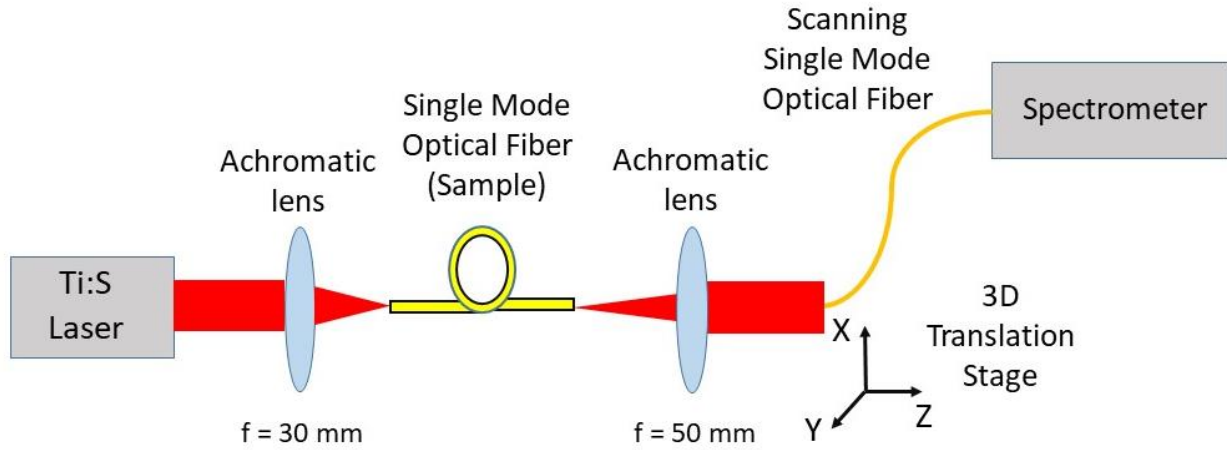


Fig. 3. Experimental setup.

The ultrashort pulses from a Ti:sapphire laser oscillator (6 fs @800 nm) are coupled into a 1-m-long single mode fiber sample using an achromatic lens with a focal length of 30 mm. After propagating through the fiber the beam is collimated with another achromatic lens ($f = 50$ mm). At a given Z distance from the second lens an automated 3D translation stage can be found, which moves a scanning single mode fiber attached to a high-resolution spectrometer. At different X coordinates a cross-scan along the Y axis is made by recording the spectra. This way the collimated beam can be characterized spatially and spectrally.

4. Results

A typical spectrogram recorded along the Y axis after the single mode fiber sample is shown in Figure 4 (a). Performing an IFFT on the recorded spectra one can obtain signals in the time domain (see Figure 4 (b)). When we took a section along the optical axis, multiple peaks were observed as can be seen in Figure 4 (c). To find the signal arising from the cladding pulse, a cross-scan was performed on the laser beam itself without any other optics in the beam's path. After IFFT of the input beam's spectrogram, by taking out the section along the optical axis, we can determine which signal belongs to the laser beam itself and which appears when the sample fiber is put in. In Figure 4 (d) the section along the optical axis of the IFFT signal of the input beam can be seen and there is no peak at around 230 fs. Since the single mode fiber only supports one mode in the core, the peak at 230 fs in Figure 4 (c) can only come from the cladding. Please note that the signal has an X like shape, which is drawn with red dashed lines in Figure 4 (b). This special shape also proves that the signal arises from the cladding. Since a ring-shaped pulse leaves the cladding in angle when it approaches the optical axis, it gets closer to the core pulse and creates an X like shape, as it propagates faster than the core pulse.

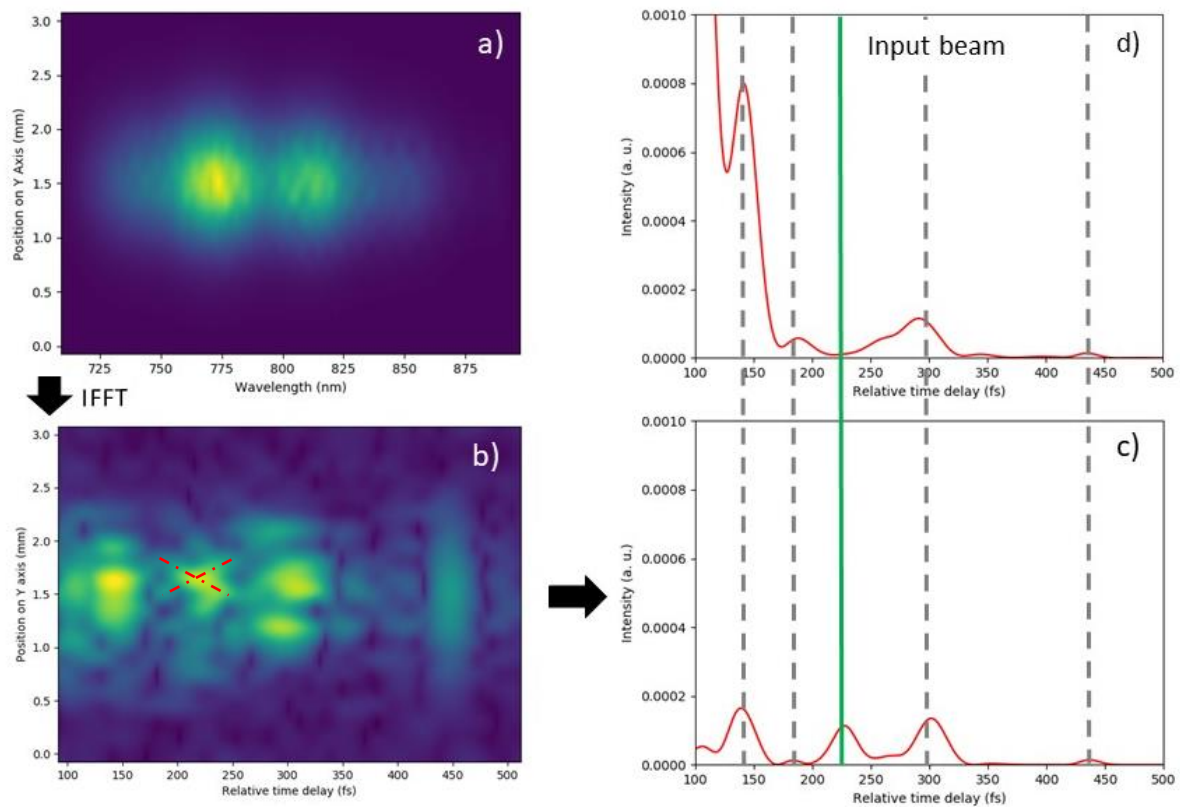


Fig. 4. (a) a typical spectrogram recording after the single mode fiber and (b) its IFFT signal. (c) IFFT signal at the optical axis (section at $y = 1.6$ mm). (d) IFFT signal of the input beam along the optical axis. Please note that after the fiber an extra peak appears in the IFFT signal at 230 fs.

After finding the peak to be investigated, measurements were carried out with 1 mm steps on the X axis and with 10 μm steps along the Y axis, both in range of 12 mm. To evaluate the measurements, an IFFT was performed on the recorded spectra at each given (x , y) point to obtain information in the time domain. Results of the cross-scans at different X vertical positions are shown in Figures 5-7.

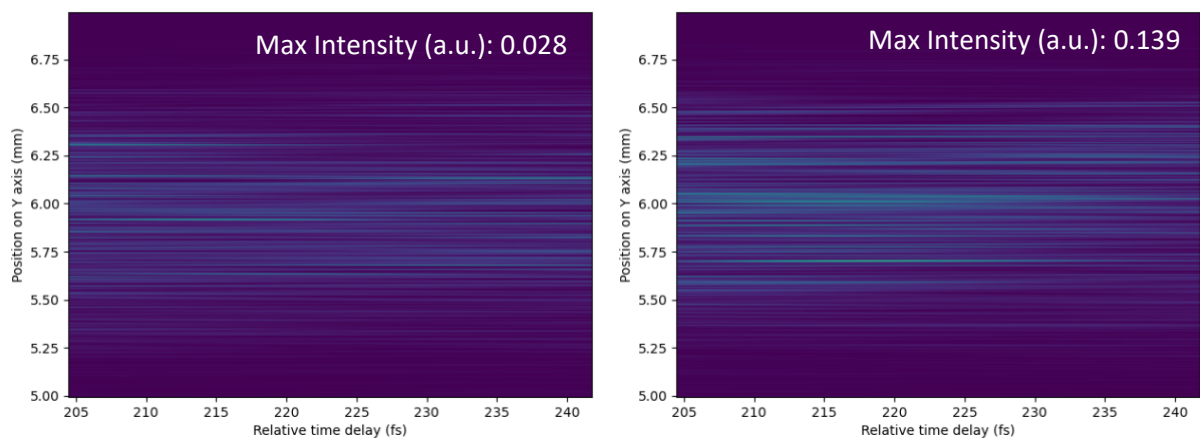


Fig. 5. Spatially resolved IFFT signals at vertical position $x = 1$ mm (left) and $x = 3$ mm (right).

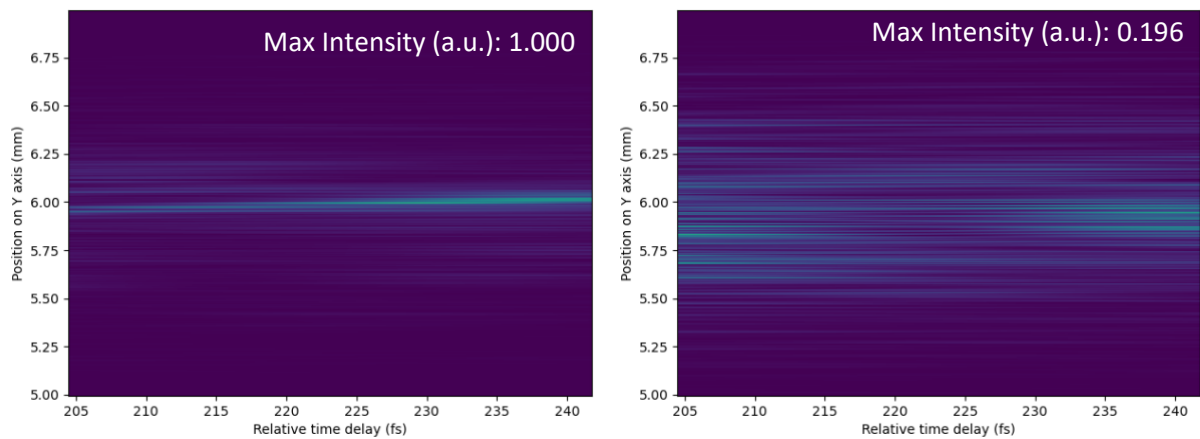


Fig. 6. Spatially resolved IFFT signals at vertical position $x = 5$ mm (left) and $x = 7$ mm (right).

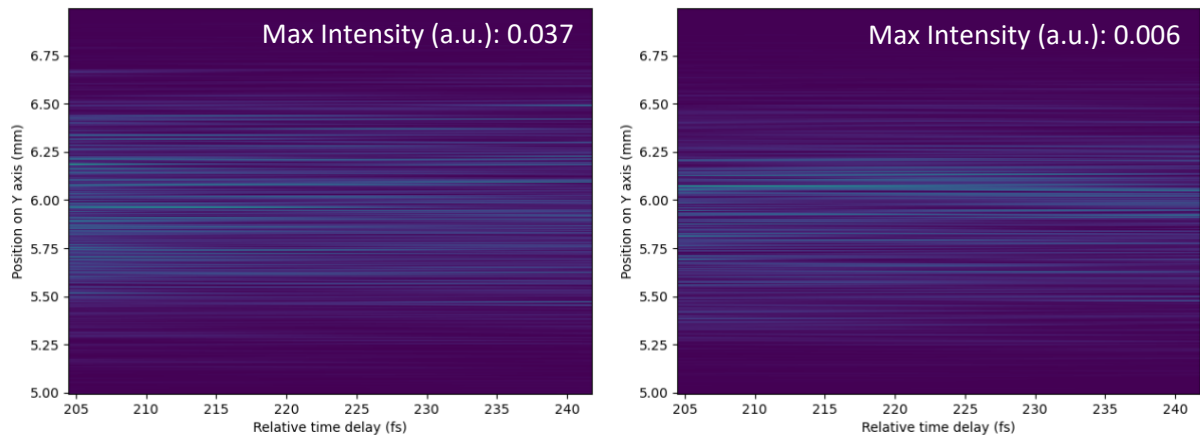


Fig. 7. Spatially resolved IFFT signals at vertical position $x = 9$ mm (left) and $x = 11$ mm (right).

One can see that at $x = 5$ mm a signal appears along the optical axis ($y = 6$ mm), which arises from the interference between the cladding and the core pulses. At the different vertical positions there are no signals present, indicating that the cladding pulse interferes with the core pulse the most intensively on the optical axis, which is due to cylindrical symmetry mentioned in Section 2. Since the colormap can be deceiving, the maximum intensity values are shown in the upper right corner of each picture.

5. Summary

In this work we have presented that ultrashort laser pulses can propagate in the cladding of single mode fibers. Cladding pulses exiting the fiber can interfere with the core pulse, which can be undesirable in experiments or applications. Although we were able to find conclusive evidence, further analysis is required to fully understand and characterize the cladding pulses generated in single mode optical fibers.

Acknowledgements

The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005** „Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems“.

Thanks to Bálint Nagyillés for helping us with programming the automated translation stage.

References

- [1] Z. Tian et al, J. Lightw. Technol. **27**, 2296 (2009)
<https://doi.org/10.1109/JLT.2008.2007507>
- [2] Y. Zhang et al, J. Lightw. Technol. **32**, 1734 (2014)
<https://doi.org/10.1109/JLT.2014.2311579>
- [3] O. V. Ivanov et al, Physics – Uspekhi **49**, 167 (2006)
<https://doi.org/10.1070/PU2006v049n02ABEH005784>
- [4] J. K. Kim et al, Opt. Lett. **34**, 2973 (2009)
<https://doi.org/10.1364/OL.34.002973>
- [5] C. J. R. Sheppard, J. Opt. Soc. Am. A **18**, 2591 (2001)
<https://doi.org/10.1364/JOSAA.18.002594>
- [6] D. Káčik et al, Opt. Express **12**, 3465 (2004)
<https://doi.org/10.1364/OPEX.12.003465>
- [7] L. Lepetit et al, J. Opt. Soc. Am. B **12**, 2467 (1995)
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.12.002467>
- [8] J. W. Nicholson et al, Opt. Express **16**, 7233 (2008)
<https://doi.org/10.1364/OE.16.007233>
- [9] B. Seignny et al, J. Lightw. Technol. **32**, 4606 (2014)
<https://doi.org/10.1109/JLT.2014.2362960>

NAGY INTENZITÁSÚ ULTRAIBOLYA LÉZEREKKEL KELTETT PLAZMÁK KONTRASZTFÜGGŐ ABSZORPCIÓJA ÉS DINAMIKÁJA

Zs. Kovács^{1,2}, B. Gilicze^{2,3,*}, S. Szatmári^{2,3}, I. B. Földes¹

¹Wigner Fizikai Kutatóközpont, Nagyenergiás Fizikai Osztály, Budapest H-1121, Magyarország

²Szegedi Tudományegyetem Kísérleti Fizikai Tanszék, Szeged H-6720, Magyarország

³Szegedi Tudományegyetem Interdiszciplináris Kiválósági Központ, Szeged H-6720, Magyarország

* Jelenlegi elérhetőség ELI-ALPS, Szeged H-6728, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.22>

1. Bevezetés

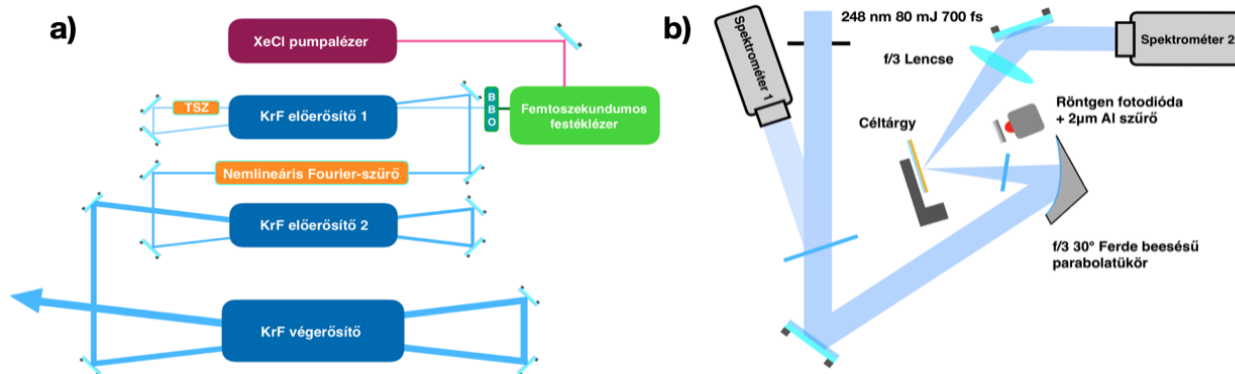
A mély ultraibolya tartományon (248 nm) működő KrF rendszerek perspektivikus alternatívát nyújtanak nemcsak a tehetetlenségi összetartáson [1], hanem a gyors begyűjtáson alapuló [2] fúziós kísérleti sémákhoz is, mint meghajtó lézerek. Ezek az előnyök a rövid hullámhosszból adódó nagyobb behatolási mélységnek (és a megnövekedett abszorpciónak), valamint a parametrikus instabilitások csökkentett hatásának tudhatók be. A rövid impulzusú elrendezések direkt erősítésük révén pedig, tiszta, pikoszekundumos vállaktól mentes impulzusokat tudnak szolgáltatni, lehetőséget teremtve az előimpulzusoktól mentes kölcsönhatási vizsgálatokhoz. Háttér azonban itt is jelen van erősített spontán emisszió formájában, amelynek hatása - mint látni fogjuk - nem elhanyagolható.

Köztudott, hogy az intenzitáskontraszt javítása kedvező hatással bír a magas harmonikusok keltésére, attoszekundumos impulzuskeltésre, izochor fűtési mechanizmusokra stb [3,4]. Az előimpulzusok hatásának csökkentésére különböző kontrasztjavító sémákat fejlesztettek ki. A manapság elérhető 10^{18} - 10^{22} Wcm⁻² intenzitások mellett a kontrasztnak legalább 10 nagyságrendűnek kell lennie.

A következőkben bemutatott kísérletünk az első célzott alkalmazása a nemrég bemutatott nemlineáris Fourier-szűrőnek mint hatékony kontrasztjavító technikának [5]. Használatával rekord gyorsulást mértünk a 248 nm hullámhosszon mind kis és nagy rendszámú céltárgyakon, nagy intenzitásokon (1.15×10^{18} W cm⁻²), ahol a relativisztikus hatások még elhanyagolhatók.

2. Kísérleti módszerek

Kísérleteinkhez az ultrarövid impulzusokat egy Szatmári-típusú lézerrendszer szolgáltatta [6]. Egy XeCl excimer által pumpált festéklézer kaszkád 500 fs félértékszélességű 497 nm központi hullámhosszúságú, 200 μJ energiájú impulzusokat bocsájtott ki, amit egy frekvenciakétszerező kristályon (béta-bárium-borát, BBO) való átvezetés éppen a KrF erősítési sáv szélességének a közepére hangol (248.5 nm). Az így kapott, tiszta, pikoszekundumos vállaktól mentes magimpulzus direkt erősítéssel egy három fokozatból álló, 6 átmenetes lánc végén éri el a végleges 80 mJ impulzusenergiát. A közelmúltban jelentős fejlesztések történtek a rendszeren. Gilicze és munkatársai az erősítőlánc bővítésén felül sikeresen implementáltak egy új kontrasztjavító eljárást, az ún. nemlineáris Fourier-szűrőt [7]. Ez a rendszerben az első pátkmenet utáni előleképezésből és a második átmenetet követő maszkolással ill. gázjetben való fókuszálással valósul meg (1.a ábra). A módszerrel kiemelkedően jó, 10^{12} intenzitáskontraszt érhető el, használatát mellőzve viszont a kontraszt 5×10^5 értékre csökkent. Így egyedi kísérleti körülmények között több mint 6 nagyságrend különbséggel vizsgáltuk az előimpulzusok hatását az abszorpcióra és a reflektált sugárzás spektrumára.



1. ábra. a) A lézerrendszer elvi felépítése, ahol TSZ egy hagyományos térszűrőt, BBO pedig a frekvenciakétszerező kristályt jelöli. b) A kísérleti elrendezés [8,9].

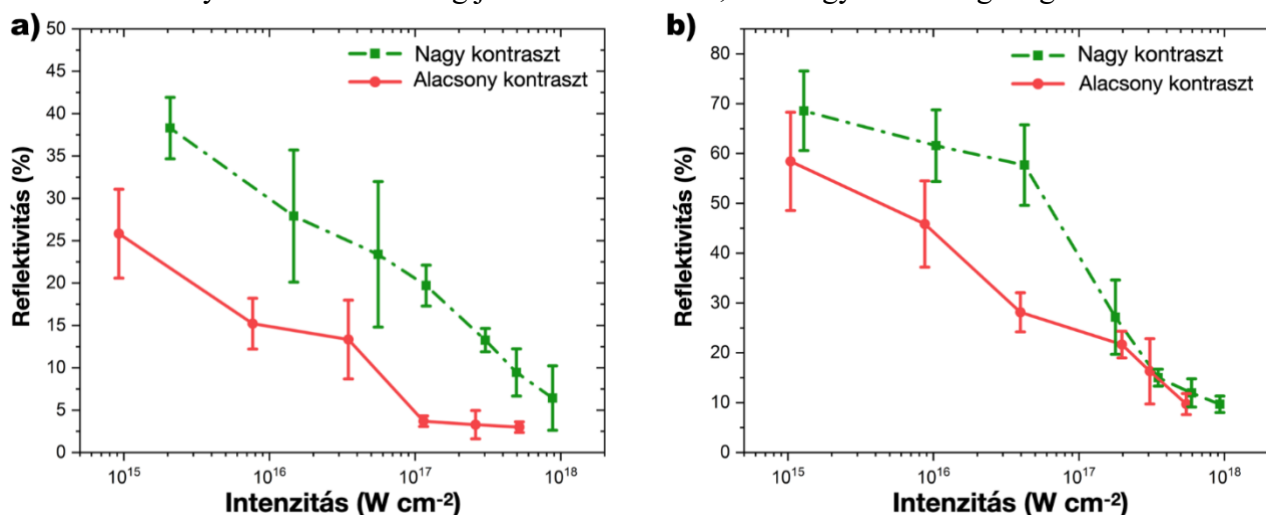
Az autokorrelációs mérésekből a főimpulzus félértékszélessége (sech^2) 700 fs-nak adódott és enyhe pozitív ($\sim 3.5 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-2}$) csörppel rendelkezett. A lézer a laboratórium vonatkoztatási rendszere szerint vízszintes polarizációjú volt (P-polarizáció), amelynek kioltási arányát valamelyest rontotta a rendszerbe épített nagy számú optikai elem (7:1). A lézerimpulzusokat vákuumkamrába bevezetve ($< 10^{-5} \text{ mbar}$) egy SORL gyártmányú, 30 fokban döntött beesési szögű f/3 parabolatükörrel fókuszáltuk egy enyhén elliptikus foltba. A félértékszélességek rendre $1.85 \pm 0.1 \mu\text{m}$ és $1.95 \pm 0.1 \mu\text{m}$ -nek adódtak a függőleges és vízszintes tengelyek mentén. A fókuszolt eloszlása szerint a lézerenergia több mint 70%-a esett az Airy-függvény központi rendjébe. A Fourier-szűrő alkalmazásával az energiakontrasztot 1:80 arányúnak mértük, és a gyenge fókuszálhatósága miatt az erősített spontán emissziós háttér (ESE) fókuszált mérete 1.56 mm méretű volt. Szűrés nélkül az energiakontraszt 1:8 arányra csökkent, valamint az ESE fókuszálhatósága ($\sim 7 \mu\text{m}$) és így intenzitása is jelentősen megnőtt. A továbbiakban a szűrővel, valamint a nélküle végzett mérésekre (10^{12} és 5×10^5 intenzitáskontraszt), nagy és alacsony kontrasztú esetekként hivatkozunk. A stabil működés biztosítása végett a lézert folytonos 1 Hz-es üzemmódban használtuk, a lövéseket pedig egy szinkronizált redőnyzárral (shutter) választottuk ki. A légmozgásokból eredő fázisfront torzulások kivédése céljából pedig a teljes nyalábutat lefedtük.

A céltárgyak úsztatott üveg hordozóra vákuum-párologtatott, bór és arany (500 nm vastag) rétegek voltak. A minták morfológiai minőségét teljes méretükben profilométerrel ellenőriztük. A mérések szerint a felületi egyenetlenségek sehol sem haladták meg az 50 nanométert, azaz simaságuk legalább $\lambda/5$. A lézerimpulzusok beesési szöge 45° , így a felületen, valós foltmérettel maximálisan $1.15 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$ csúcshintenzitást értünk el. Megvédve a céltárgy ablációjából származó lerakódásoktól a parabolatükört, egy 1 mm vastagságú suprasil kvarclemezt helyeztünk a minta és a tükör közé. Ez nem befolyásolta érdemben a fókuszálhatóságot, sem a beérkező nyaláb spektrumát. A mintákat a vákuumkamrán belül egy $1.25 \mu\text{m}$ lépésközű xyz céltárgymozgatóval (STANDA 133-373) pozícionáltuk. A mozgató tengelyek stabilitását mechanikus profilométerrel is ellenőriztük. A 4 cm-es mozgató tartományon minden irányban $\pm 2.5 \mu\text{m}$ szórást mértünk, ami jóval a lézerimpulzusaink $6 \mu\text{m}$ -es Rayleigh-hosszán belül maradt. Az intenzitás változtatásához a nyalábutba helyezett blende méretét változtattuk. A diffrakciós effektusokat figyelembe véve, minden nyalábméret esetén megnéztük a fókuszolt méretét, így a céltárgyon 55 mJ és 0.8 mJ között változott az energia, és három nagyságrendben az intenzitás. A fókuszcsík meghatározásához a targeten keltett plazma intenzitásfüggő röntgen-emisszióját használtuk, amit egy $2 \mu\text{m}$ vastag alumíniumszűrővel ellátott

röntgenérzékeny fotodiódával (IRD AXUV-100) detektáltunk. Minden mérési pont értékét 5-10 lövés átlagából számítottuk.

3.Eredmények és diszkusszió

A céltárgy reflektivitását (és így az abszorpcióját) a kollimáló lencse és kamraablak transzmissziós veszteségeit figyelembe véve mértük. A reflektált sugárzás éles térbeli kontúrral rendelkezett, így a nem tükörszerű irányba történő szórását kizártuk. A mért reflexió intenzitásfüggése a 2. ábrán látható. Mind arany (a), és bór (b) céltárgyak esetén monoton csökkenést tapasztaltunk növekvő intenzitás mellett. Moderált, alacsonyabb intenzitások ($\sim 10^{15}$ Wcm⁻²) esetén az eredmények egybevágóak korábbi, kutatócsoportunk és Fedosejevs által végzett plazmatükör kísérletekkel [10,11]. A várakozásoknak megfelelően az alacsony kontrasztú esetekben már a kis intenzitásokon megfigyelhető abszorpció jelentősen nagyobb, ám az intenzitás növekedésével, különösen a nagy rendszámú arany esetén a különbség jelentősen csökken, illetve gyakorlatilag megszűnik.



2.ábra. a) arany céltárgy reflektivitása a lézerintenzitás függvényében, ahol a zöld, szaggatott vonal 10^{12} , a folytonos piros vonal pedig az alacsony 5×10^5 intenzitáskontrasztú esetet jelöli. Ugyanezen mérések bór céltárgyon (b) [8].

A korai, alacsony intenzitású vizsgálatokat Teubner és munkatársai további kísérletekkel folytatták [12,13]. Elrendezésükben az általunk használthoz hasonló elvű Szatmári-típusú lézerrendszerrel 10^9 - 10^{10} intenzitáskontraszt és 10^{17} Wcm⁻² csúcshintenzitás mellett a lézer 45 fokos beesési szöge esetén az abszorpció meghaladta a 80%-t, amit a szimulációk nem tudtak megmagyarázni. Elmondható, hogy kis rendszámú céltárgyak esetén eredményeink jó egyezést mutatnak a korábbi megfigyelésekkel. Arany, és különösen az alacsony kontraszt esetén az abszorpció rendkívül nagy, a legnagyobb intenzitásoknál meghaladja a 95%-t. Tudható, hogy fémek esetén a fotoionizációs küszöb alacsonyabb, így a hosszabb előplazma teret enged nagymértékű inverz fékezési sugárzásnak és egyben hatékony abszorberként is funkcionál. Már a 90-es évek óta tudjuk [14], hogy 248 nm hullámhosszon már 10^7 Wcm⁻² intenzitású, nanoszekundumos előimpulzusok is képesek előplazmát keltetni. Esetünkben ezt a küszöbértéket jelentősen meghaladtuk. Alacsony kontraszt mellett az ESE intenzitása meghaladta a 10^{12} Wcm⁻² értéket. A repülési időadatok szerint már a kis intenzitású ESE is képes 10^6 cm/s sebességű, táguló plazmafrontot létrehozni [13], így az előplazma skálahossza meghaladhatja akár $\lambda/L=30$ értéket is. A mérési adatok és szimulációk szerint, nagyjából

10^{17} Wcm^{-2} -ig az ütközéses, afölött pedig az ütközésmentes mechanizmusok dominálnak ebben az esetben. Nagy tisztaságú impulzusok esetén joggal tehetjük fel a kérdést, mi okozza a hasonlóan nagy abszorpciót a csúcsintenzitások környékén. Meredek plazmaprofil esetén mi a meghatározó mechanizmus? Meg kell említenünk, hogy habár impulzusaink szubpikoszekundumosak, 700 fs félértékszélesség és sech^2 impulzusprofil mellett, a főimpulzus csúcsától már 1 ps távolságban, a felfutó él is képes 10^{14} Wcm^{-2} intenzitást, és így akár 0.1λ hosszú plazmát kelteni. Továbbá a 45 fokos beesési szög különösen kedvez a rezonancia-abszorpciónak [15]. Nagy, 10^{18} Wcm^{-2} fölötti intenzitás esetében a Brunel-abszorpció vagy vákuum-fűtés dominálhat [16], ami önmagában is adhat több mint 80% abszorpciót. Mivel az abszorpciós mechanizmusok között nincs éles elválasztó határ, feltételezhetően egyfajta kevert összhatás felelős a teljes abszorpcióért, aminek ellenőrzéséhez további szimulációk szükségesek.

Eredményeinket összevethetjük infravörös lézerekkel végzett kísérletekkel is. Ziener és munkatársai 90 fs és 500 fs hosszúságú CPA lézerekkel több mint 90%-os abszorpciót értek el 10^{17} Wcm^{-2} intenzitáson, ami a miénkkel hasonló eredmények értelmezhető, különösen akkor, ha számba vesszük a hullámhossz különbségből adódó $I\lambda^2$ faktort [17]. Singh és kollégái egy nemrég közölt tanulmányukban alacsony, közepes, valamint nagy kontrasztú 30 fs-os lézerimpulzusok reflektivitását vizsgálták közel $10^{19} \text{ W cm}^{-2}$ intenzitáson [4]. Az általunk elért legnagyobb érték $1.15 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$ megfeleltethető az $I\lambda^2$ skálázódás szerint az ő legalacsonyabb kezdőintenzitásukkal, ám esetünkben valamelyest nagyobb volt az abszorpció, amit a rövid hullámhossz plazmabéli mélyebb behatolási mélységével magyarázunk.

Talán legérdekesebb eredményünk a reflektált impulzusok megfigyelt spektrális eltolódása. Ezek értékei 0.08 nm és 0.65 nm között változtak az intenzitás és a kontraszt függvényében. Minden esetben kék-eltolódást tapasztaltunk, azaz a kritikus elektronsűrűségű plazmafront a céltárgy normálisa szerint kifelé, a lézer irányával szemben tárgult. Ennek sebességére az egyszerű, nemrelativisztikus Doppler-formulából következtetünk:

$$v = \frac{c}{2 \cos \theta} \frac{\Delta \lambda}{\lambda} \quad (1).$$

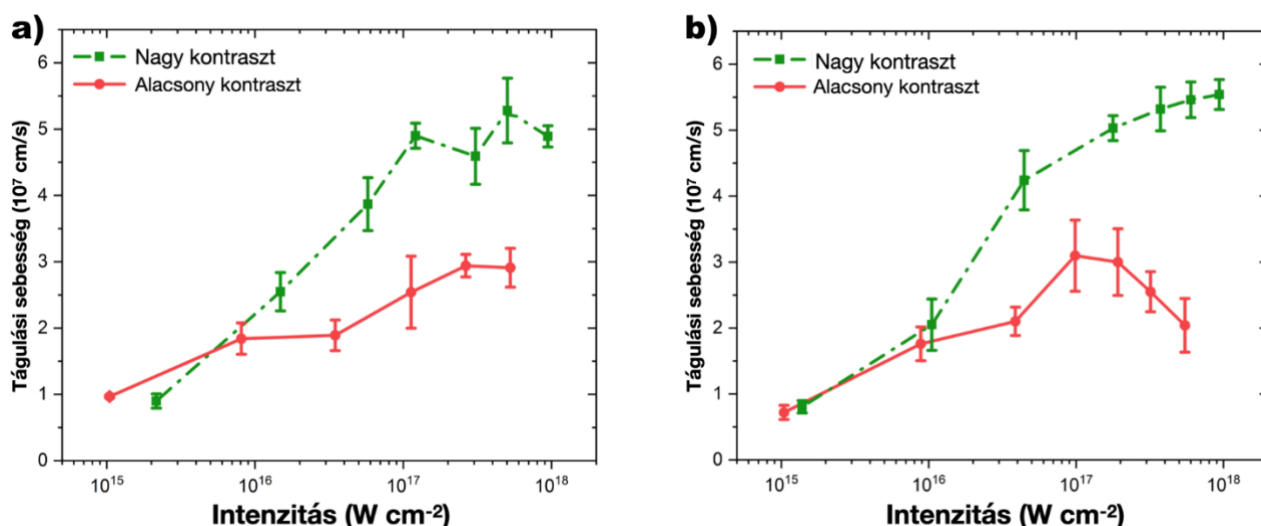
Állandó, 45 fokos beesés esetén a sebesség az eltolódás mértékével arányos (3. ábra).

Egyértelmű, hogy a tiszta impulzusok kedvező hatással bírnak a tágulás sebességére, de minden esetben telítést tapasztalunk 10^{17} Wcm^{-2} felett, bór esetében pedig a csúcsintenzitásnál alacsony kontraszt esetén a tendencia megfordulni látszik. A maximális sebesség bór céltárgyon volt megfigyelhető, mégpedig $5.6 \times 10^7 \text{ cms}^{-1}$ a nagy kontrasztú esetben, ami $1.5 \times 10^{18} \text{ ms}^{-2}$ gyorsulásnak feleltethető meg. Figyelemre méltó, hogy ez az érték jelentősen (közel négyszer) magasabb, mint a korábbi KrF rendszerekkel végzett hasonló kísérletekben [18], ahol a kontraszt jelentősen alacsonyabb volt (10^8 - 10^9). Mivel az ultraibolya tartományban az általunk alkalmazott intenzitás még nem relativisztikus, ezért a maximális intenzitás esetére Wilks és Kruer gondolatmenetét alkalmazhatjuk [19]. A Brunel-abszorpció formálisan:

$$A = \frac{I_{abs}}{I_0} = 8 \frac{v_{osc}}{c} \sin^3 \theta \quad (2).$$

A felületi elektronok v_{osc} oszcillációs sebessége kifejezhető, mint:

$$v_{osc} = \frac{e|E|}{m\omega} = \frac{e}{m\omega} \sqrt{\frac{8\pi I_0}{c}} \quad (3).$$



3.ábra. A reflektáló plazmaréteg tágulási sebességei intenzitás és kontraszt függvényében arany (a) és bór (b) céltárgyakról [8].

Az ennek a sebességnek megfelelő forró elektron-hőmérséklet 11.5 keV és az ebből származtatott ion-akusztikus sebesség $7.3 \times 10^7 \text{ cm s}^{-1}$. Az tágulás irányával ellentétes, a lézerfény nyomásából eredő sebességkomponens megbecsülhető:

$$v_{lp} = \frac{p}{\rho \delta} \tau \approx 1.1 \times 10^7 \frac{\text{cm}}{\text{s}} \quad (4).$$

Itt $p \sim 330 \text{ Mbar}$ fénynyomást feltételeztünk, ahol ρ a sűrűséget, τ pedig a lézerimpulzus hosszának a felét (350 fs), jelöli. Becsült skálahossznak a $\delta = \lambda/5$ értéket adtuk meg. A kétféle következtetett sebesség különbsége jól visszaadja a plazma spektrális mérésekből származtatott tágulási sebességét. Ez az eredmény is azt sejteti, hogy Fourier-szűrő alkalmazása esetén a plazmaprofil már elég meredek a Brunel-mechanizmus érvényesüléséhez. Az alacsony kontraszt esetén tapasztalt kisebb tágulási sebességek magyarázata is ehhez kapcsolódik. A sűrű előplazma és nagy skálahossz miatt a lézer elektromos tere és a kritikus réteg kölcsönhatása gyengébb, valamint jelentős energiavesztéseget szenvedhet az impulzus mire az reflexiót szenved.

4.Összefoglalás

Először demonstráltuk sikeresen a nemlineáris Fourier-szűrő alkalmazását intenzív lézer-plazma kísérletben. Így egyedi körülmények között, extrém nagy intenzitáskontraszt mellett több mint 90% abszorpciót mértünk kis (bór) és nagy (arany) rendszámú céltárgyakon. Az elért nagy, de még nem relativisztikus intenzitás mellett kontrasztfüggő kék-eltolódást mértünk táguló plazmáról, ami ezen a hullámhosszon az eddig mért legmagasabb érték.

Köszönetnyilvánítás

Ez úton megköszönjük Prof. Dr. Heinrich Horának, a New South Wales Egyetem kutatójának a kísérletek elvégzéséhez az erős motivációt, valamint Bali Krisztiánnak a technikai segítségnyújtást.

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben.

Irodalom

- [1] Obenschain SP, Colombant DG, Schmitt AJ, Sethian JD, McGeoch MW. Phys. Plasmas 13 (2006)
<https://doi.org/10.1063/1.2198796>
- [2] Betti R, Zhou C. Phys. Plasmas 12, 110702 (2005)
<https://doi.org/10.1063/1.2127932>
- [3] C. Rödel, M. Heyer, M. Behmke, M. Kübel, O. Jackel, W. Zigler, D. Ehrt, M.C. Klauza, G.G. Paulus; Appl. Phys. B. 103: 295-302 (2011)
<https://doi.org/10.1007/s00340-010-4329-7>
- [4] Singh P S, Cui Y Q, Adak A, Lad A D, Chatterjee G, Brijesh P, Sheng Z M & Kumar R. Sci. Reports 5, 17870 (2016)
<https://doi.org/10.1038/srep17870>
- [5] B. Gilicze, R. Dajka, I. B. Földes, S. Szatmári. Optics Express 25(17), 20791 (2017)
<https://doi.org/10.1364/OE.25.020791>
- [6] S. Szatmári; Appl. Phys. B 58, 211-223 (1994)
<https://doi.org/10.1007/BF01081313>
- [7] B. Gilicze, Zs. Homik, S. Szatmári. Optics Express 27(12):17377-17386 (2019)
<https://doi.org/10.1364/OE.27.017377>
- [8] Zs. Kovács, K. Bali, B. Gilicze, S. Szatmári, I. B. Földes. Phil.Trans.R.Soc. A378, 0043 (2020)
<https://doi.org/10.1098/rsta.2020.0043>
- [9] Zs. Kovács, B. Gilicze, S. Szatmári, I. B. Földes. Front. Phys. 8:321. (2020)
<https://doi.org/10.3389/fphy.2020.00321>
- [10] B. Gilicze, A. Barna, Zs. Kovács, S. Szatmári, I. B. Földes. Rev. Sci. Inst. 87, 083101 (2016)
<https://doi.org/10.1063/1.4960089>
- [11] R. Fedosejevs, R. Ottmann, R. Sigel, G. Kühnle, S. Szatmári, F. P. Schäfer. Phys. Rev. Lett. 64, 1250–1253 (1990)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.1250>
- [12] U. Teubner, J. Bergmann, B. Wonterghem, F. P. Schäfer, R. Sauerbrey. Phys. Rev. Lett. 70, 794 (1993)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.794>
- [13] U. Teubner, P. Gibbon, E. Förster. Physics of Plasmas 3, 2679 (1996)
<https://doi.org/10.1063/1.871525>
- [14] I. B. Földes, J. S. Bakos, K. Gál, Z. Juhász, M. Kedves, G. Kocsis, S. Szatmári, G. Veres Laser Phys. 10, 264–269 (2000)
- [15] Ginzburg VL. Oxford, UK: Pergamon. 2nd rev. and encl. ed. 1. (1970)
- [16] Brunel F. Phys. Rev. Lett. 59, 52–55 (1987)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.52>

- [17] C. Ziener, P. S. Foster, E. J. Divall, C. J. Hooker, M. Hutchinson, A. J. Langley, D. Neely. J. Appl. Phys. 93, 768–770 (2003)
<https://doi.org/10.1063/1.1525062>
- [18] R. Sauerbrey. Phys. Plasmas 3, 4712–4716 (1996)
<https://doi.org/10.1063/1.872038>
- [19] S. C. Wilks, W. L. Kruer. IEEE J. Quantum Electron. 33, 1954–1968 (1997)
<https://doi.org/10.1109/3.641310>

ON THE ELECTRICAL RESISTANCE OF LASER JOINED METAL SHEETS

Andor Körmöczy¹, Gábor Horváth¹, Tamás Szörényi¹, Zsolt Geretovszky¹

¹University of Szeged, Department of Optics and Quantum Electronics,
H-6720 Szeged, Dóm tér 9., Hungary

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.23>

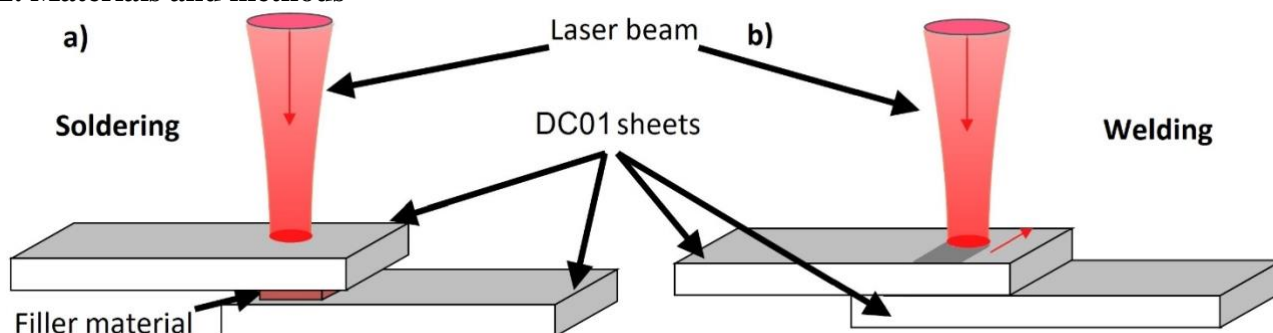
1. Introduction

Nowadays, environmentally friendly solutions are gaining more and more grounding. Thanks to this trend hybrid or fully electric propulsion systems emerge as alternatives to conventional internal combustion engines [1]. The limited capacity of the available battery cells storing the electrical energy and the high energy loss due to the large number of joints necessary to integrate the individual cells into battery packs lead to considerable losses and otherwise unnecessary solutions to implement (e.g. thermal management subsystems) [2,3].

The extent of the energy loss is determined by the electrical resistance of the joints. Laser welding and laser assisted filler-based joining (soldering and brazing) are promising alternatives to traditional techniques in producing high quality bonds while meeting even the strictest requirements of the aviation industry [4,5]. With laser soldered joints possessing excellent electrical properties can be created at low thermal loads. This is one of the reasons why laser soldering is a preferred technique in electronics in general and during assembling battery pack, in particular.

In this paper the challenges of electrical characterization of joints created by laser-assisted techniques are discussed.

2. Materials and methods



*Fig 1.
Schematic illustration of a) soldering and b) welding.*

Joints were formed between two 0.5 mm thick, 15 mm wide and 30 mm long DC01 steel sheets used to replace Hilumin®, which is the material of the caps of Li-ion cylindrical cells. Hilumin® is DC04 steel sheet coated with a nickel layer of several micrometer thickness. The similarity of DC04 and DC01 in chemical composition, electrical and mechanical properties justified the usage of the latter for our present study. The two sheets were connected in a lap geometry to model the “battery cap to bus bar” joint configuration, which is the most widely used geometry in battery pack assembly. The steel plates were clamped together in a home-made jig. In case of soldering, the filler was applied

between the two steel pieces in form of sheets of 0.16 ± 0.01 mm thickness and 5.0 ± 0.1 mm width as shown in Figure 1a. The length of the filler sheet was varied between 2.0 and 6.0 mm. The tin-based filler (Sn99.3Cu0.7) used had a liquidus temperature of 227 °C and contained a rosin-based flux for insuring the wetting, as well [6].

In case of welding, the jig was moved under the laser beam with a high-speed, programmable motorised table (Allen Bradley Ultra 3000) at 50 mm/s translational speed. The schematic is shown in Figure 1b.

As a heat source a cw Yb-doped fiber laser (SPI SP-400C-0005), emitting 400 W maximum power at 1071 nm with a M^2 value around 1.08 was used. The sample was irradiated by the laser beam at nearly perpendicular angle of incidence ($\sim 10^\circ$). In case of welding, a glass lens of 300 mm focal length produced a spot size of about 0.3 mm in diameter on the sample surface. In case of soldering, a glass lens of 1000 mm focal length was used to illuminate an ~ 4.5 mm $1/e^2$ diameter spot on the upper surface of the sheet pair. In situ power measurement was also realized with a photodiode (Thorlabs S130C).

The measurement of the electrical properties of the laser-formed joints is an interesting and challenging task with no standardized methods available. The main problem is that it is impossible to measure directly the resistance of the joint, because no matter how close we get with needle tipped probes, the measured resistance will always include the resistance of the base sheets to be bonded. The joints have a resistance, scattering between 10 to 100 $\mu\Omega$. These values are in the order of the resistance of the measurement probes. To eliminate this problem, a four-point probe measurement geometry [7] was used: the current at the ends of the plates was feeding by a TTI CPX200 external power supply, and the voltage drop was measured by a Keithley 2401 multimeter on a 21 mm long section so that the geometric centre of the joint coincided with the middle point of the voltage measurement distance [8]. This method is perfectly suitable for comparing the electrical characteristics of different samples. However, it does not give exact values for the joint resistance.

3. Results

3.1. The assessment of the methods developed for measuring the electrical resistance of joints

In order to accurately determine low resistances, the most trivial solution is to pass high current through the resistance to produce a voltage drop that can be measured with sufficient accuracy. As an example, to determine a 15 $\mu\Omega$ resistance with 1 % measurement error a current of 180 A is required, at least [7]. The use of such high currents may cause a temperature rise within the samples that changes the resistance, ultimately it even may cause damage in the structure of the joint. Therefore, instead of using high currents other solutions should be found.

One of the solutions for overcoming the above problem, coined as *asymptotic method*, is to measure the resistance at several, gradually increasing current values and then plot the resistances as a function of the current to determine the value to which the curve is approaching. As an example, the resistance of a sample, welded with a laser power of 400 W and a scanning speed of 50 mm/s, as a function of the measuring currents is shown in Figure 2a. Another approach, the *slope method* is more accurate. Here by plotting the voltage-current pairs measured at several currents, the slope of the straight line fitted to the measurement points will provide the value of the resistance under study. An additional advantage of the slope method is that it is self-checking. If all points fit well to the line, it means that during the measurement the current flow did not cause any temperature rise in the system, i.e. the resistance was constant. The results obtained by the slope for the same welded sample is shown in Figure 2b.

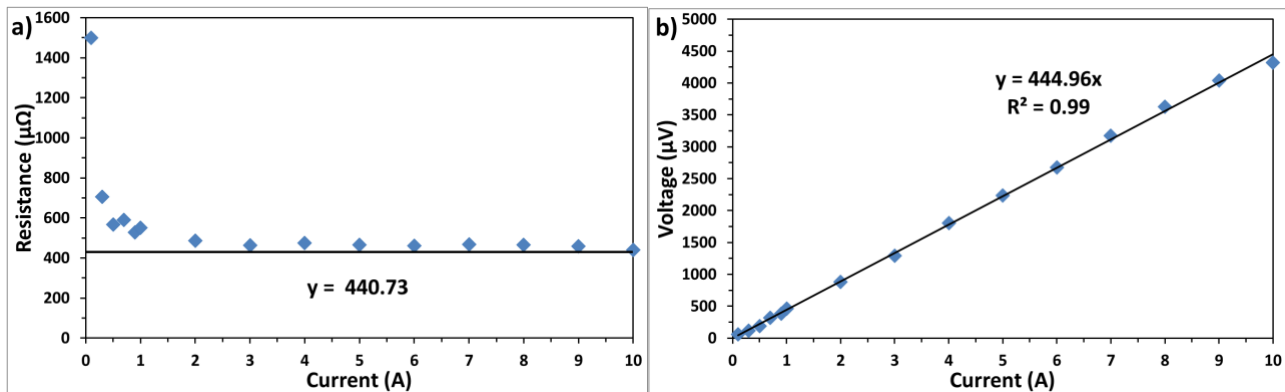


Fig 2.

Evaluation of the measurement of the resistance of a sample welded with laser power of 400 W and scanning speed of 50 mm/s by the a) asymptotic and the b) slope method.

The *slope method* was used throughout the measurements reported below. 10 A was determined as the maximum current value allowing measurement without any noticeable temperature rise. Since the analysis of the results of the preliminary measurements revealed that to produce a measurement error below 1 % in the resistance at least 6 measurement points were necessary, 0.1, 0.5, 1, 3, 6 and 10 A were selected as measurement points to cover the entire current range.

The resistance values calculated from these measurements do not provide the joint resistance directly, but reflect the net resistance of the metal sheets and the joint in between the two inner measurement probes (of the 4-point probe method). Therefore, for examining the contribution of the resistance of the joint to that measured on the sample, the change in resistance was monitored as a function of the distance between the two voltage probes. When analysing the results two cases were distinguished: measurements in the *far* and *near* zones. To the *far zone* (indicated by the blue lines in Figure 3) belonged those cases where the measuring probes were outside of the joining area, while in the *near zone* (marked in red) the measurement took place inside the joining area as illustrated in Figure 3.

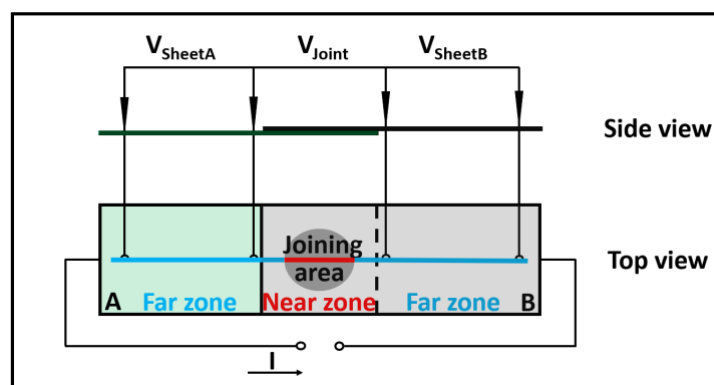


Fig 3.

The difference between the far (blue) and near (red) zone during the four-point probe measurement of the electrical resistance in case of soldering.

In case of soldering, the joining area was close to circular in shape with a diameter up to 10 mm. In welding, the joining area was much smaller: the width of the welding seam, i.e. the relevant dimension of the seam in relation to the resistance measuring, was around 0.5 mm. Accordingly, when performing the resistance measurements at 3, 6, 9, 12, 15, 21, 41 and 81 mm distances both zones could be tested for the soldered samples, while all measurement points laid in the far zone in case of welding.

3.2. The far zone

Soldering were performed at 120 W laser power for 5 s irradiation time, while for welding 360 W laser power and 50 mm/s scanning speed was used. For comparison, the resistance of a steel sheet, used for our joining experiments, was also measured, and will be reported as reference (base metal). In Figure 4 the resistance values measured on the three sample types are plotted as a function of the measuring distance. The boundary between the two zones can be defined only in case of soldering where the measured points fit on lines of different slopes in the two zones. In the case of welding, no such limit was observed, in line with the expectation outlined above.

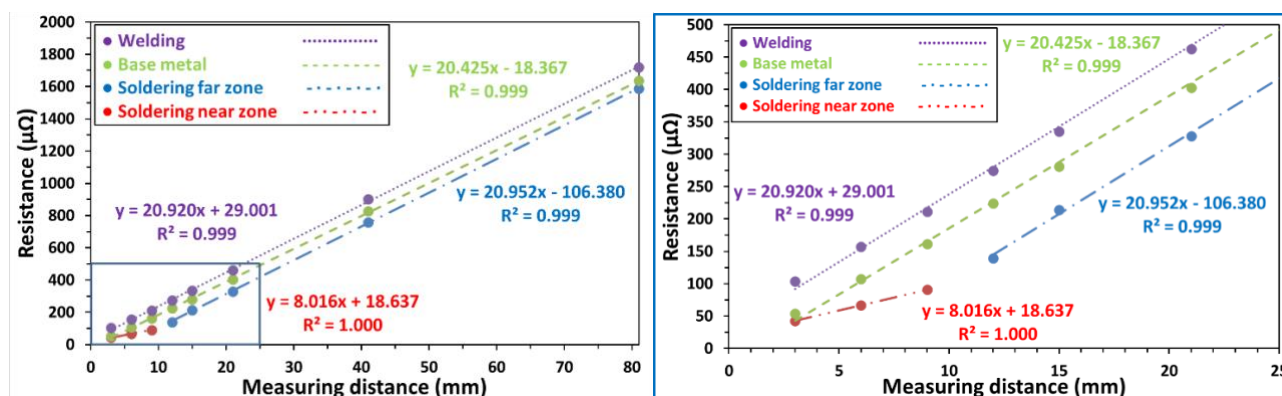


Fig 4.

Resistance values measured on welded and soldered samples and a DC01 plate without bonding as a function of the measuring distance.

In the far zone the slopes of the three lines agreed within 2 %. Based on this finding and considering the well known

$$R = \rho \cdot \frac{l}{A}$$

correlation, the slope of the resistance vs. distance curves in the far zone are interpreted as a material property, i.e. a material specific resistivity-like quantity, normalized to the joining area. The fact that in this zone the resistance of the steel sheets is dominant was further proved by measuring the resistance of different materials.

Material of the sheet	Thickness (mm)	Slope (μΩ/mm)
DC01	0.50	20.425
Stainless steel	0.50	22.543
Acid resistant steel	0.50	58.075
Hilumin®	0.25	322.310
Aluminium alloy	1.00	1.799
Aluminium (99%)	1.00	1.717
Copper alloy (bronze)	1.00	4.144

Table 1.

The slope of the resistance vs. distance curves in the far zone for 7 different materials.

As shown in Table 1 for the materials of high electrical conductivity (such as aluminium or copper alloy) the measured slopes proved to be smaller, while for the less conductive materials (such as the steel sheets and Hilumin®) higher slopes were measured, supporting the above presented interpretation.

It can be observed in Figure 4 that in case of welding (purple dotted line) all measured resistances were higher than the respective resistances of the base material sheet (green dashed line), while laser soldered samples (blue dot-dashed line) exhibit lower resistance than the base metal reference. This difference may be interpreted so that a new component, i.e. the solder with inherently lower resistance is added to the equivalent circle during soldering, while the resistance of the weld seam is higher than that of the base metal due to the finer grain structure of the resolidified material.

3.3. The near zone in case of soldering

Resistance values in the near zone could only be measured in case of soldered samples, because the lateral extent of the weld seam was not large enough. To confirm the interpretation of the slopes of the resistance-distance curves put forward above, the measurements were repeated on samples containing fillers of 2.0, 4.0 and 6.0 mm length, ending up with 1.6, 3.2 and 4.8 mm³, while keeping all other process parameters constant. Since the amount of the solder determines the size of the bonding area, an increase in the solder volume means an increase in the joint area. In the far zone, the slopes of the lines moving continuously away from the line of the unbonded steel sheet (green line) were again constant within 2 % as visualized in Figure 5. The measured resistance decreased monotonically with increasing amount of the solder.

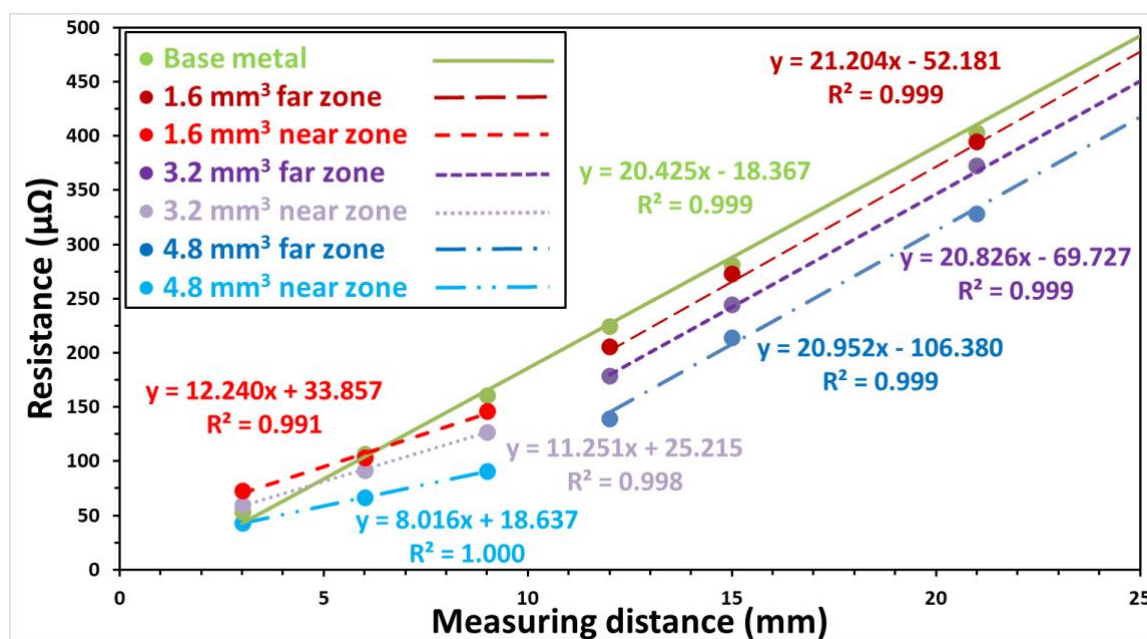


Fig 5.

The resistance as a function of measuring distance for soldered samples with different amounts of solders.

In the near zone the slope of the fitted lines decreased with increasing amount of solder, indicating that the resistance of filler material became more and more significant in determining the resistance of the system. The decrease in the slopes is due to the fact, that the solder is a better conductor than the base steel sheet. The resistance values decreasing with decreasing measurement distance approach the actual joint resistance.

4. Conclusion

One key issue when using electric drive chains is energy efficiency. When the energy is provided by a battery pack the energy loss is determined by the electrical resistance of the connections between individual cells. The measurement of the electrical characteristics of the joints is not yet standardized. In this paper the benefits and problems of a four-point resistance measurement method, developed for measuring the electrical resistance of joints, were presented. The resistance values were determined by plotting voltage-current pairs according to the slope method, eliminating the problem of heating caused by high currents. It was shown that the resistance of two lap welded sheets is higher, while that of the soldered joint is smaller than the resistance of the base metal sheet.

Future goals include modelling near and far zone behaviours, and comparing them with the experimental results, as well as further characterisation of joints made by welding and soldering Hilumin® sheets.

Acknowledgements

The work is supported by the EFOP-3.6.1-16-2016-00014 project, entitled “Research and development of disruptive technologies in the area of e-mobility and their integration into the engineering education”.

We would like to acknowledge Edutus University for providing the laser source and other supplementary equipment for our experiments.

References

- [1] I. Gál, I. Jankovics, Gy. Bicsák, Á. Veress, J. Rohács, D. Rohács: Conceptual design of a small 4-seater aircraft with hybrid propulsion system, Innováció és Fenntartható Felszíni Közlekedés konferencia 2017, pp. 143-150. (2017)
- [2] V. Madonna, P. Giangrande, M. Galea: Electrical power generation in aircraft: review, challenges, and opportunities. IEEE transactions on transportation electrification, Vol. 4, No. 3, pp. 646-659, (2018)
<https://doi.org/10.1109/TTE.2018.2834142>
- [3] S. S. Lee, T. H. Kim, S. J. Hu, W. W. Cai, J. A. Abell: Joining technologies for automotive lithium-ion battery manufacturing: a review, ASME 2010 International Manufacturing Science and Engineering Conference, Vol. 1, pp. 541-549 (2010)
<https://doi.org/10.1115/MSEC2010-34168>
- [4] M. J. Brand, P. A. Schmidt, M. F. Zaeh, A. Jossen: Welding techniques for battery cells and resulting electrical contact resistances, Journal of Energy Storage Vol. 1, pp. 7–14, (2015)
<https://doi.org/10.1016/j.est.2015.04.001>
- [5] M. J. Brand, E. I. Kolp, P. Berg, T. Bach, P. Schmidt, A. Jossen: Electrical resistances of soldered battery cell connections, Journal of Energy Storage Vol. 12, pp. 45–54, (2017)
<https://doi.org/10.1016/j.est.2017.03.019>
- [6] Datasheet of lead free solder, FELDER GMBH Löttechnik, accessed November 2020,
https://www.felder.de/files/felder/pdf/EN_18-ISO-Core_RA_lead-free.pdf

[7] P. A. Schmidt, M. Schweier, M. F. Zaeh: Joining of lithium-ion batteries using laser beam welding: electrical losses of welded aluminum and copper joints, 31st International Congress on Applications of Lasers and Electro-Optics., pp. 915-923., (2012)

<https://doi.org/10.2351/1.5062563>

[8] A. Körmöczy, G. Horváth, T. Szörényi, and Zs. Geretovszky: Laser assisted filler-based joining for battery assembly in aviation, SAE Int. J. Aerosp., Vol. **13**, No. 2 (2020)

<https://doi.org/10.4271/01-13-02-0011>

NÖVÉNYI MINTÁK FLUORESZCENCIA LECSENGÉSI IDEJÉNEK VIZSGÁLATAI

Lenk Sándor¹, Sági-Kazár Máté², Illés Levente¹, Solymosi Katalin³, Solti Ádám², Barócsi Attila¹

¹*Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Atomfizika Tanszék, 1111 Budapest
Műegyetem rakpart 3*

²*Eötvös Loránd Tudományegyetem, Növényélettani és Molekuláris Növénybiológiai Tanszék, 1117
Budapest, Pázmány Péter sétány 1/C*

³*Eötvös Loránd Tudományegyetem, Növény szerkezet-tani Tanszék, 1117 Budapest, Pázmány Péter
sétány 1/C*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.24>

1. Növényélettani bevezető

A színtestek (vagy plasztiszok) két burokmembránnal határolt és belső membránrendszerrel rendelkező sejtszervecskék, amelyek számos típusa található változatos formában és funkcióval a növények sejtjeiben [1]. Általánosságban a sejt felépítő jellegű (anabolikus), energia-befektetést igénylő anyagcsere-folyamataiban vesznek részt. A zöld növényekben hétféle színtestet szokás elkülöníteni. Ezek közül a legismertebb a fotoszintézis folyamatáért felelős zöld színtest (kloroplasztisz), amely belsejében helyezkedik el a belső burokmembrán befűződéséből kialakult, magányos membrán zsákokból (ún. tilakoidokból) és korongszerűen egymásra rétegződött tilakoidokból álló komplex membránrendszer, amelybe a fotoszintetikus apparátus beágyazódik. Ennek fontos elemei a fénnel kölcsönható pigment-molekulákat tartalmazó ún. fotorendszerek, valamint a fotoszintézishez szükséges enzimek. A fotorendszeren belül a fény energiájának összegyűjtését végző fénybegyűjtő, valamint továbbításáért felelős antenna molekulákat képező klorofill-molekulák tömegei veszik körbe a reakcióközpontot, ami gerjesztett elektron formájában csapdázza az energiát a további fotokémiai reakciókhoz.

Más színtestektől eltérően a jellemzően kicsi, kezdetleges belső membránnal rendelkező proplasztiszok az osztódószövetekre jellemzőek, és különféle belső és külső fejlődési szignálok hatására belőlük indul fejlődésnek a többi színtest típus. Fény hatására a földfeletti, fotoszintetizáló szövetekben a proplasztiszok kloroplasztisszá alakulnak. Fény hiányában azonban úgynevezett etioplasztiszok differenciálódnak, melyek klorofill-molekulákat egyáltalán nem és a fotoszintézishez szükséges enzimek közül is csak néhányat tartalmaznak [2].

Ez azzal függ össze, hogy a klorofilok bioszintézise a zárvatermő növényekben fényfüggő folyamat, melyet a protoklorofillid-oxidoreduktáz enzim katalizál. Fény hiányában a protoklorofillid-klorofillid átalakulás nem megy végbe, klorofilok nem szintetizálódnak, és a fotoszintetikus apparátus felépítésében fontos pigment-protein komplexek a tilakoid-membránokba nem épülhetnek be. Ugyanakkor jellegzetes belső membránrendszerük átrendeződésének köszönhetően megvilágítás hatására az etioplasztiszok gyorsan működőképes kloroplasztisszá tudnak alakulni.

A fotoszintetikus rendszerek működése vizsgálatának egyik módja különböző gerjesztési protokollok alkalmazása mellett a fluoreszcencia válaszjel regisztrálása, majd ebből leggyakrabban arányszámok segítségével a fotokémiai és nem fotokémiai kvantumhatásfokok becslése. Az egyik leggyakrabban

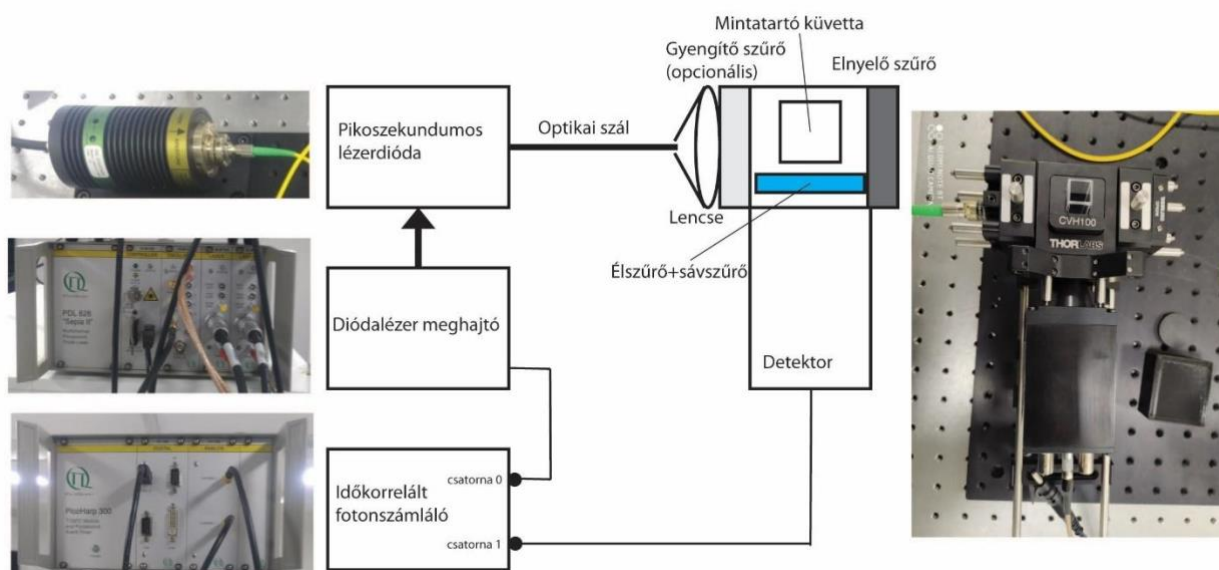
használt mérési protokoll az impulzus amplitúdó modulált (PAM, pulse amplitude modulation) technika [3]. Ennek során a minta fénykörnyezetét állandó, fotoszintetikusan aktív ('aktinikus') megvilágítással, valamint nagy ('telítő') fényimpulzusokkal több nagyságrend dinamikával változtatjuk, melynek hatását egy állandó, de kis fotonszámú, adott (kHz–MHz) frekvenciájú mérőjelre kapott, a mérőjel periódusánál nagyobb (μs – ms) időállandókat felbontani képes változó fluoreszcencia válasz formájában detektáljuk. A módszer segítségével a fotorendszereket igen eltérő növényfiziológiai állapotban tesztelhetjük, ami lehetőséget biztosít arra, hogy a fotokémiai és nem fotokémiai fényhasznosításról megállapításokat tegyünk. A módszer hátránya az, hogy például a fluoreszcencia-jel csökkenéssel válaszolhat a fluoróforok számának csökkenésére és egy megnövekedett alternatív energiafelhasználási (kioltási) mechanizmusra egyaránt [4]. Egy másik fluoreszcencia alapú méréstechnika – a fluoreszcencia lecsengési idők vizsgálata – segíthet a különböző állapotú működőképes rendszerekben különbséget tenni.

A fluoreszcencia lecsengési idők mérésénél ugyanis nagy (néhány 10 MHz) ismétlési frekvenciával rövid – ideális esetben – Dirac-delta-szerű gerjesztést adunk a vizsgált mintára és az erre érkező fluoreszcencia válaszjelet nagy időfelbontással regisztráljuk. A mérésünk eredménye a Dirac-impulzust követő fluoreszcencia jel intenzitásának csökkenése. Ez az intenzitás-csökkenés függ az adott anyagra és azt körülvevő közegre jellemző természetes fluoreszcencia élettartamtól, valamint a nem-sugárzásos átmeneti mechanizmusok kioltási rátájától.

2. Méréstechnikai alapok és eszközök

A fluoreszcencia lecsengési idők többnyire a 'ns', vagy az alatti időtartományba esnek. Vizsgálatukhoz így a mérni kívánt lecsengési időknél rövidebb impulzusokat szolgáltató gerjesztő forrásokra van szükség. A megoldást esetünkben az LDH-P-C-650 (PicoQuant) szállba csatolt lézerdióda jelenti, amely adott lézerteljesítmény kimenet esetén $\tau_{\text{FWHM}} < 100$ ps hosszú impulzusokat szolgáltat. A mérni kívánt fluoreszcencia lecsengési időállandók hasonlóak ehhez az impulzushosszhoz, amihez 10 ps vagy az alatti időfelbontás szükséges. Ilyen időfelbontásra az időkorrelált egyfoton detektálás (Time Correlated Single Photon Counting – TCSPC) az egyik elfogadott megoldás. A módszer lényege, hogy a mintát 10 MHz nagyságrendű ismétlődési frekvenciával fényimpulzusokkal gerjesztjük és mérjük a gerjesztés és mintából jövő első foton között eltelt időt. A feldolgozó rendszer a gyakorlatban nagyszámú (esetünkben 2^{16}) időcsatornát kezel, melyek időintervalluma rövid (esetünkben akár 4 ps is lehet). Minden sikeresen detektált fotonnál valamelyik időcsatorna értéke +1-gyel növekszik. A mérés eredménye detektálási gyakoriság az eltelt idő függvényében. Vagyis több stopperóra-szerű mérést felösszegezve határozzuk meg a fluoreszcencia élettartamát. A mért eredmények a gyakorlatban általában egy vagy több exponenciális függvény összegeként írhatók le. Kísérletünkben MPD-100-CTB (PicoQuant) egyfoton detektort használtunk PicoHarp 300 (PicoQuant) TCSPC elektronikával. A mérési elrendezést az 1. ábra mutatja.

Megjegyzendő, hogy egy (általunk itt nem alkalmazott) alternatív módszer a fluoreszcencia élettartam vizsgálatára egyrészt a fázisérzékeny detektálás alkalmazása, amikor a mintát modulált fénnel gerjesztve az időállandókat a fázisban eltolt és amplitúdóban modulált fluoreszcencia-jelből számoljuk. Másrészt további lehetőség a molekuláris folyamatok direkt vizsgálatára a lecsengési idők ultrafinom felbontása femtoszekundumos spektroszkópiával.



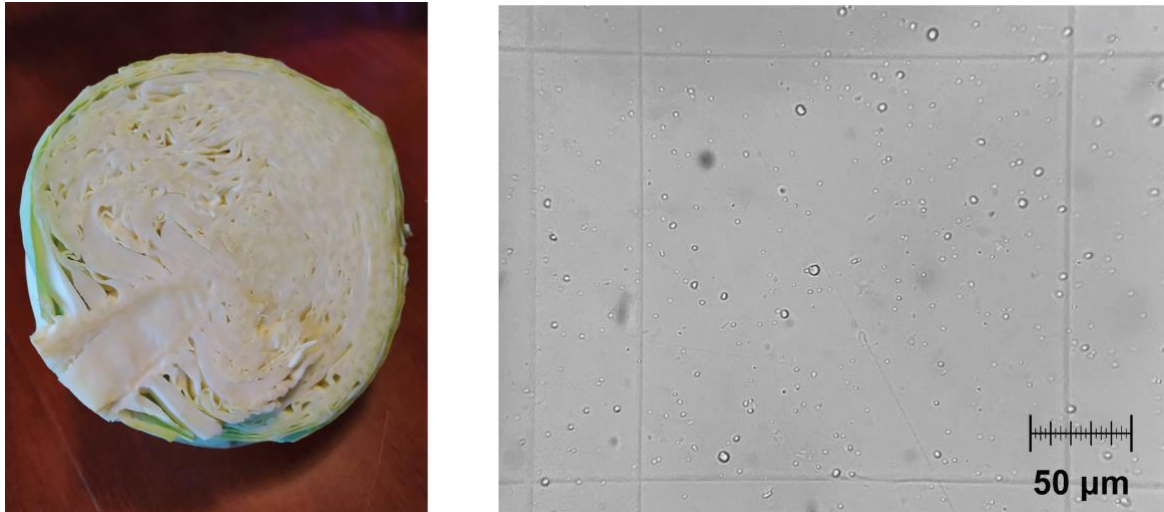
1. ábra

A megvalósított mérési elrendezés sematikus ábrája kiegészítve a főbb elemekről készült fotókkal.

A diódlézerünk fénye egy kollimátor lencsével ellátott optikai szálon keresztül jut a mintartóba. A diódlézer impulzushossza a lézerteljesítmény függvényében változik. Az impulzushossz és alak optimumát az elérhető maximális fényintenzitás 50%-ánál találtuk. Az időkorrelált mérés technika sajátossága, hogy legfeljebb a gerjesztő fotonok 5%-áról detektálhatunk emittált fluoreszcenciát. Ha ennél gyakrabban érkezik fluoreszcencia-foton a detektorra, akkor az a mérés szisztematikus hibáját eredményezi az úgynevezett 'pile-up' (felhalmozódás) jelenségén keresztül. Erősen fluoreszkáló mintáknál így a gerjesztő fény csökkentésére lehet szükség, amely lehetőségre a mérési elrendezésbe egy gyengítő szűrőt terveztünk. A detektorba a fluoreszcencia fényen kívül a gerjesztő jel is beszóródhat. A (655 nm-es) gerjesztő és a mérni kívánt (~690-750 nm tartományba eső) fluoreszcencia jeleket spektrálisan optikai szűrőkkel választjuk szét. Kevésbé fluoreszkáló mintáknál a fluoreszcencia fény akár több nagyságrenddel kisebb lehet a gerjesztő forrás szórt fényénél. Ezért egy optikai élszűrő (Thorlabs FGB25) és egy sávszűrő (Semrock 708/75) kombinált alkalmazására van szükség.

3. Előzetes eredmények

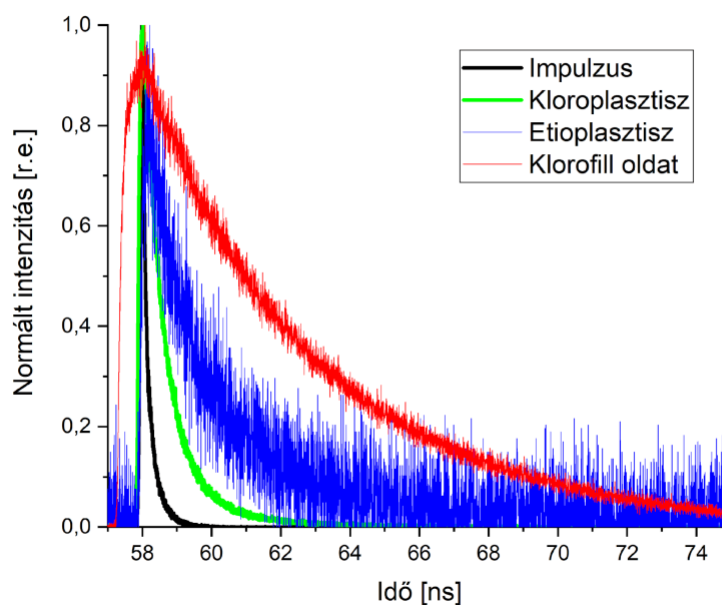
A kísérleti összeállításunkat fejeskáposztából (*Brassica oleracea* convar. capitata var. alba, 2. ábra bal oldala) izolált, fotoszintetikus működésre kész kloroplasztiszokkal, valamint gátolt működésű izolált etioplasztiszokkal (2. ábra jobb oldala), és fotoszintetikus működést nem mutató, acetonban oldott klorofill oldattal teszteltük.



2. ábra

Bal oldalt: fotó egy fejes káposztáról az izolálás megkezdése előtt, jobb oldalt: optikai mikroszkópos felvétel fejeskáposztából izolált etioplasztiszokról

A 3. ábrán a mért fluoreszcencia lecsengési időket egyre normálva, lineáris skálán mutatjuk be, a mérési eredmények a vártak megfelelő eredményt szolgáltattak. A kloroplasztiszoknál a fényenergia igen jelentős részben fotokémiai úton hasznosul, ami miatt a fluoreszcencia lecsengési idő lerövidül. Ezzel szemben a korlátozott fotoszintetikus működésű etioplasztisznál a fluoreszcencia lecsengési idő lényegesen hosszabb, míg a fotoszintetikus működést nem mutató acetanban oldott klorofill mintánál a leghosszabb. Az etioplasztisz mintánál szükséges mérési idő lényegesen nagyobb volt és a jel/zaj viszony is rosszabbnak bizonyult. Ennek oka részben az etioplasztisz minta kisebb organellum száma, jóval alacsonyabb pigmenttartalma lehetett.



3. ábra

A készülék válasz függvény (fekete), a mért fluoreszcencia lecsengési ideje egy kloroplasztisz mintának (zöld), egy etioplasztisz mintának (kék) és egy klorofill oldatnak (piros)

4. Összefoglalás

Mérési elrendezést hoztunk létre folyadékban elegyített, 655 nm-en gerjeszthető növényi minták fluoreszcencia lecsengési idejének vizsgálatára. Kísérleteket kezdtünk különböző fotoszintetikus működést mutató növényi mintákkal. Az optimális fotoszintetikus működést mutató kloroplasztiszoknál rövidebb, míg a fotoszintetikusan nem aktív etioplasztiszoknál hosszabb fluoreszcencia lecsengési időket találtunk.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást a Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alap támogatta a Nemzeti Kiválósági Program keretében, a “Kvantumbitek előállítása, megosztása és kvantuminformációs hálózatok fejlesztése” című, 2017-1.2.1-NKP-2017-00001. számú projekt részeként, valamint az Új Nemzeti Kiválósági Program keretében, az “Etioplasztiszok vastranszport mechanizmusainak molekuláris vizsgálata” című, ÚNKP-20-3-I-ELTE-862 azonosítójú projekt részeként.

Irodalom

- [1] R.R. Wise, “Plastids: The Anabolic Factories of Plant Cells”, in: R.A. Bradshaw and P.D. Stahl (eds.), *Encyclopedia of Cell Biology*, **2**, 324–330, (Waltham, MA: Academic Press, 2016)
<https://doi.org/10.1016/B978-0-12-394447-4.20030-8>
- [2] R.D. Willows, „Chlorophyll synthesis”, in: R.R. Wise and J.K. Hooper (eds.), *The Structure and Function of Plastids*, pp. 295–313, (Amsterdam: Springer, 2006)
<https://doi.org/10.1007/978-1-4020-4061-0>
- [3] U. Schreiber, U. Schliwa and W. Bilger Continuous recording of photochemical and non-photochemical chlorophyll fluorescence quenching with a new type of modulation fluorimeter *Photosynth. Res.* **10**, 51–62 (1986)
<https://doi.org/10.1007/BF00024185>
- [4] J. Zaks, K. Amarnath, E. J. Sylak-Glassman, G. R. Fleming Models and measurements of energy-dependent quenching *Photosynth. Res.* **116**, 389–409 (2013)
<https://doi.org/10.1007/s11120-013-9857-7>

Analitikus módszer szilárdtestekben lézerimpulzus által elmozdított töltések kiszámítására

Magashegyi István¹, Földi Péter^{1,2}

¹Szegedi Tudományegyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, Tisza L. krt. 84-86, 6720 Szeged

²ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Kft., Wolfgang Sandner utca 3, 6728 Szeged

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.25>

1. Bevezetés

Szilárdtestek optikai gerjesztésének modellezésére jól kidolgozott elméleti módszerek léteznek, különösen az alacsony intenzitástartományban, Tankönyvekből ismert pl. hogy félvezetők közel monokromatikus megvilágítása esetén csak olyan hullámhosszakon jönnek létre sávátmenetek, amelyeknél a gerjesztő fotonenergia nagyobb, mint a tiltott sáv szélessége. Ezzel szemben, a femtoszekundumos tartományba eső impulzushosszak és a GV/m csúcstérerősségek egy olyan tartományt jelentenek, amelyben akár több elektronvoltnyi szélességű tiltott sávok is áthidalhatók közeli infravörös gerjesztéssel, anélkül, hogy maga a szilárdtest struktúra visszafordíthatatlan sérülést szenvedne. Kísérletileg pl. kristályos ZnO [1,2] és amorf SiO₂ [3] esetében is detektáltak sávátmenettel járó jelenségeket; ezekben az esetekben tipikus fotonenergiák és a tiltott sáv szélességének viszonya miatt "többfotonos" folyamatokról szokás beszélni. Ebben a tartományban az alkalmazott modellek jelenleg még sokkal kevésbé letisztultak.

A sávátmenetek indukálása mellett az intenzív lézerimpulzusok a szilárdtestekben áramokat is létrehozhatnak. Ezek az áramok időben olyan gyorsan oszcillálnak [4], hogy azt a jelenlegi detektorok nem képesek feloldani. Ezzel szemben időintegráljuk – azaz a lézerimpulzus által elmozdított töltés – már mérhető. A továbbiakban egy olyan elméleti módszert mutatunk be, amelynek segítségével ki tudjuk számítani ezt a töltést.

2. Modell

Tételezzük fel azt, hogy kezdetben a szilárdtest termikus egyensúlyban van, így az eredő áram nulla [5]. Ez úgy adódik, hogy $\Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ Bloch-állapotokat tekintve (ahol \mathbf{k} az állapot síkhullám részének a kitevőjében szerepel, n pedig a sávindex), egyensúlyban $\Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ és $\Psi_n(-\mathbf{k}, \mathbf{r})$ azonos mértékben populáltak, az általuk hordozott áramok pedig azonos nagyságúak, de ellentétes irányúak. A továbbiakban egyelektron képben dolgozva, egyetlen $\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$ kezdőállapotból induló dinamikára koncentrálnunk. Az optikai gerjesztés hatására ez a Bloch-állapotoknak egy szuperpozíciójába megy át, amit a következő alakba írunk:

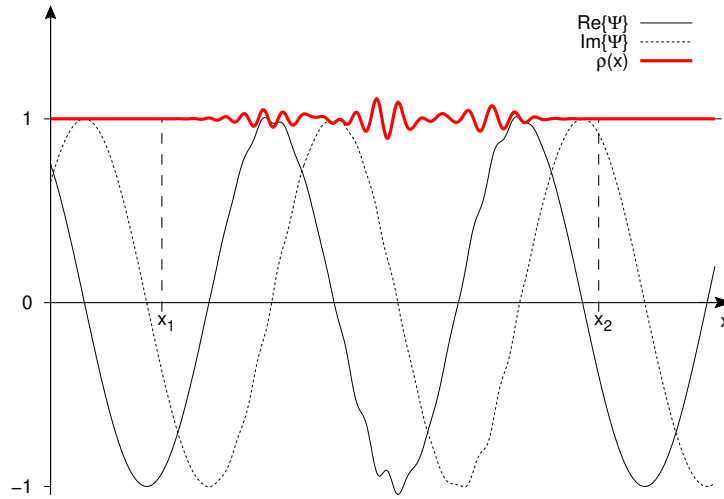
$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) + \Phi(\mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) + \sum_n \int_{BZ} \phi_n(\mathbf{k}) \Psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t) d^3\mathbf{k}, \quad (1)$$

azaz leválasztjuk az $E_{n_0}(\mathbf{k}) = \hbar\omega_{n_0}(\mathbf{k})$ diszperziós reláció ismeretében a triviális időfüggéssel

$$\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) = \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}) e^{-i\omega_{n_0}(\mathbf{k})t} \quad (2)$$

jellemezhető kezdőállapot. (Az (1) egyenletben a BZ index arra utal, hogy az integrálást az első Brillouin zónára kell elvégezni.) Ezt szemlélteti egydimenzióban az 1. ábra.

Itt érdemes megjegyezni, hogy szigorúan véve a dipólközelítést, az (1) egyenlet jobb oldalán az integrál csak olyan tagokat tartalmaz, amelyek esetén \mathbf{k} megegyezik a kiinduló állapotéval. ("Az



1. ábra. Lézertér hatása az elemi cellára átlagolt Bloch-hullámfüggvényre kvadratikuss diszperziós reláció esetén. A piros görbe a $\rho(x) = |\Psi(x)|^2$ sűrűséget mutatja a lézerimpulzussal történő kölcsönhatás után, illetve láthatjuk $\Psi(x)$ valós és képzetes részét is.

optikai átmenetek vertikálisak", ami a mértékválasztástól függetlenül igaz [6].) A dipólközelítés érvényességét ahhoz szokás kötni, hogy az elemi cella lineáris mérete sokkal kisebb a hullámhossznál. Ez természetesen infravörös tartományban mindenképpen igaz, ugyanakkor a lokális gerjesztés mindenképpen okoz kicsiny eltéréseket a pusztán vertikális átmenetek esetétől.

Ezután a szokásos nemrelativisztikus áramsűrűséget

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{e\hbar}{m} \text{Im} \{ \Psi^*(\mathbf{r}, t) \nabla \Psi(\mathbf{r}, t) \} \quad (3)$$

számítjuk ki az (1) állapotban. Az egyszerűség kedvéért a továbbiakban legyen $e = 1$. Csak az x komponens kiírva azt kapjuk hogy:

$$\begin{aligned} j_x(\mathbf{r}, t) = & \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Psi_{n_0}^*(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) \frac{\partial \Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_0(\mathbf{r}, t)} + \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Phi(\mathbf{r}, t) \frac{\partial \Phi(\mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_\Phi(\mathbf{r}, t)} \\ & + \underbrace{\frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \Psi_{n_0}^*(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t) \frac{\partial \Phi(\mathbf{r}, t)}{\partial x} + \Phi^*(\mathbf{r}, t) \frac{\partial \Psi_{n_0}(\mathbf{r}, t)}{\partial x} \right\}}_{j_c(\mathbf{r}, t)}. \end{aligned}$$

Itt a $j_0(\mathbf{r}, t)$ tag tisztán a $\Psi_{n_0}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}, t)$ állapothoz tartozó áramsűrűség, $j_\Phi(\mathbf{r}, t)$ ugyanígy $\Phi(\mathbf{r}, t)$ -hez tartozik, a $j_c(\mathbf{r}, t)$ kereszttag pedig a két korábbi állapot közötti szuperpozíció eredménye.

Tegyük fel, hogy a töltés meghatározására szolgáló detektorok $t = 0$ -ban kapcsolnak be. Természetesen a Q_0 töltés (ami j_0 időintegrálja) lineárisan növekszik. Ugyanakkor ha elvégezzük a

számítást a kezdeti állapothoz képest ellentétes \mathbf{k} esetén is, akkor ez a tag kiesik. Így elegendő a

$$\begin{aligned} Q_d(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) &= Q_d(\mathbf{r}) = \int_0^\infty j(\mathbf{r}, t) - j_0(\mathbf{r}, t) dt \\ &= \underbrace{\int_0^\infty j_\Phi(\mathbf{r}, t) dt}_{Q_\Phi(\mathbf{r})} + \underbrace{\int_0^\infty j_c(\mathbf{r}, t) dt}_{Q_c(\mathbf{r})}. \end{aligned} \quad (4)$$

különbségre koncentrálunk, ami teljes egészében a lézerimpulzus hatására jön létre.

3. A lézerimpulzus által elmozdított ösztöltés analitikus kiszámítása

A könnyebb átláthatóság kedvéért a továbbiakban egy dimenzióban (1D) vizsgáljuk a kérdést. Elsőként tekintsük $Q_\Phi(x)$ -t, azaz $Q_\Phi(\mathbf{r})$ 1D verzióját:

$$Q_\Phi(x) = \frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \sum_{n,n'} \int_0^\infty \int_{BZ} \int_{BZ} e^{-i[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]t} \phi_n^*(k) \phi_{n'}(k') \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_{n'}(k', x)}{\partial x} dk dk' dt \right\}. \quad (5)$$

Ez az integrál egyszerűsödik, ha alkalmazzuk az

$$\int_0^\infty e^{-i[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]t} dt = \pi \delta[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)] - \frac{i}{\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)}, \quad (6)$$

összefüggést, ahol a jobb oldalon Dirac-delta jelenik meg és Cauchy-féle főérték értendő. Érdemes bevezetni a $Q_\Phi(x) = Q'_\Phi(x) + Q''_\Phi(x)$, jelölést, ahol $Q'_\Phi(x)$ esetén az (6) egyenlet jobb oldalának első tagját helyettesítjük az (5) egyenletbe, míg $Q''_\Phi(x)$ tartalmazza a főértékintegrált.

A továbblépéshez szükség van arra, hogy legalább kvalitaív képünk legyen a rendszer diszperziós relációjáról. Az egyszerűség kedvéért tételezzük fel, hogy a tiltott sávok direktek, azaz $\delta[\omega_{n'}(k') - \omega_n(k)]$ csak azonos n és n' sávindexek esetén ad nem nulla járulékot. Az $\omega_n(k') = \omega_n(k)$ egyenlőség triviálisan igaz a $k = k'$ esetben, de természetesen nem ez az egyetlen lehetőség. Bloch-elektronok esetén fennáll, hogy $\omega_n(k) = \omega_n(-k)$, így a $-k = k'$ is megoldása az egyenlőségnek. Az egyszerűség kedvéért a továbbiakban csak ezt a két lehetőséget tekintjük. Így azt kapjuk, hogy

$$\begin{aligned} Q'_\Phi(x) &= \frac{\hbar}{m} \text{Im} \left\{ \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{|\phi_n(k)|^2}{|\omega'_n(k)|} \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_n(k, x)}{\partial x} dk \right. \\ &\quad \left. + \pi \sum_n \int_{BZ} \frac{\phi_n^*(k) \phi_n(-k)}{|\omega'_n(-k)|} \Psi_n^*(k, x) \frac{\partial \Psi_n(-k, x)}{\partial x} dk \right\}, \end{aligned} \quad (7)$$

ahol $\omega'_n(k) = \frac{\omega_n(k')}{\partial k'}|_{k'=k}$, azaz a Bloch-elektronokhoz tartozó sebesség az n -edik sávban. Mivel $\Psi_n(-k, x) = \Psi_n^*(k, x)$, a második tag képzetes része eltűnik, így az nem ad járulékot Q_Φ -hez. Ha átlagolunk egy, az x -et tartalmazó, a hosszúságú elemi cellára a

$$\overline{Q'_\Phi}(x) = \frac{1}{a} \int_{x-a/2}^{x+a/2} Q'_\Phi(s) ds \quad (8)$$

módon, akkor felhasználva az

$$\frac{1}{m} \int_0^a \Psi_n^*(k, x) (-i\hbar) \frac{\partial \Psi_n(k, x)}{x} dx = \frac{\omega'_n(k)}{N} \quad (9)$$

összefüggést, írhatjuk, hogy

$$\overline{Q'_\Phi} = \frac{\pi}{L} \sum_n \int_{BZ} \text{sgn}[\omega'_n(k)] |\phi_n(k)|^2 dk. \quad (10)$$

Itt N az elemi cellák számát jelenti, $L = Na$ pedig az egydimenziós kristály teljes hossza.

A Q''_Φ integrál kiszámításához az integrandusz, mint komplex függvény analitikus tulajdonságainak ismeretére van szükség. Ez természetesen általában (különösen, ha a $\phi_n(k)$ "kifejtési együtthatókat" numerikusan nyerjük) nem ismert. Fizikailag feltehetjük, hogy $\phi_n(k)$ minden sávra korlátos tartójú k -ban. Ha emellett még az is igaz, hogy a teljes integrandusz analitikus a komplex k síkon (kivéve a valós tengelyt), akkor Q''_Φ , mint kontúrintegrál, kiszámítható a kölcsőhatási tartománytól távol eső detektorok esetére:

$$\begin{aligned} \overline{Q_\Phi}(x \rightarrow \infty) &= \frac{\pi}{L} \left(\sum_n \int_{BZ} (1 + \text{sgn}[\omega'_n(k)]) |\phi_n(k)|^2 dk \right) \\ &= \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^+ |\phi_n(k)|^2 dk, \end{aligned} \quad (11)$$

$$\overline{Q_\Phi}(x \rightarrow -\infty) = -\frac{2\pi}{L} \sum_n \int^- |\phi_n(k)|^2 dk. \quad (12)$$

Ezekben az egyenletekben a $+$ illetve $-$ felső indexek a Brillouin-zóna azon tartományára történő integrálást jelentenek, ahol $\omega'_n(k)$ pozitív illetve negatív. Mindez intuitívan azt jelenti, hogy a lézer által keltett $\Phi(x)$ hullámcsomag a pozitív (negatív) irányban azzal arányos töltést szállít, amennyi ebben a szuperpozícióban a pozitív (negatív) sebességű komponensek aránya. Azt is fontos észrevenni, hogy az egyes sávok járulékaik függetlenek egymástól.

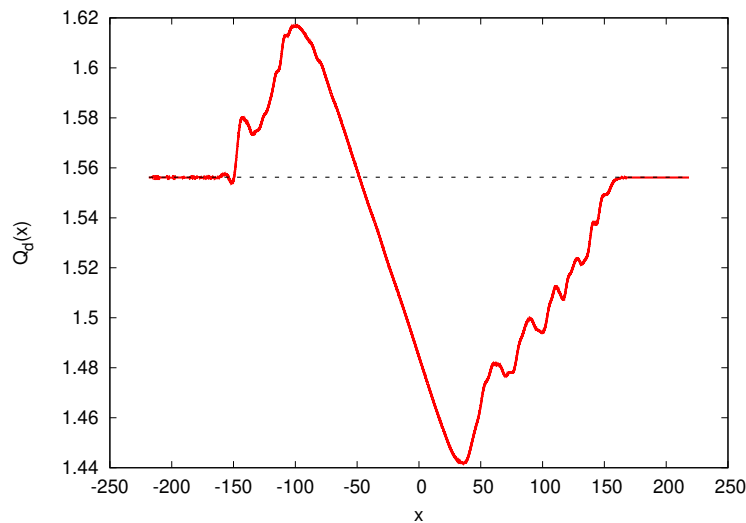
Az interferenciából származó Q_c töltést hasonló lépéseket követve számíthatjuk ki. Összegezve az eredményt, a teljes, cellára átlagolt $\overline{Q_d}$ töltésre, nagy, pozitív x értékek esetén adódik:

$$\overline{Q_d}(x \rightarrow \infty) = \frac{2\pi}{L} \sum_n \int^+ |\phi_n(k)|^2 dk + \begin{cases} \frac{2\pi}{L} \text{Re} \{ \phi_{n_0}(k_0) \} & \text{ha } \omega'_{n_0}(k_0) > 0 \\ 0 & \text{egyébként,} \end{cases} \quad (13)$$

míg a negatív irányban

$$\overline{Q_d}(x \rightarrow -\infty) = -\frac{2\pi}{L} \sum_n \int^- |\phi_n(k)|^2 dk - \begin{cases} \frac{2\pi}{L} \text{Re} \{ \phi_{n_0}(k_0) \} & \text{ha } \omega'_{n_0}(k_0) < 0 \\ 0 & \text{egyébként.} \end{cases} \quad (14)$$

Érdemes megjegyezni, hogy – bár a fenti két egyenletből nem látszik azonnal – a (13) és (14) egyenletekkel adott limeszek megegyeznek egymással. Ez analitikusan is belátható, ha a kontinuitási egyenletből indulunk ki, és észrevesszük, hogy lokális gerjesztés esetén, a kölcsönhatási tartománynál észrevehetően nagyobb intervallumot tekintve, a lézertér hatása nem változtatja meg az intervallumon belüli elektronsűrűséget.



2. ábra. A $Q_d(x)$ mennyiség (önkényes egységekben) két, kvadratikus diszperzióval rendelkező sáv numerikusan számolt gerjesztése után. Az x tengelyen az egység az elemi cella hossza, a . A szaggatott vonal a (13) és (14) egyenleteknek megfelelő eredmény. A paraméterek: A lézerimpulzus központi hullámhossza 800 nm, csúcstérerőssége 1 GV/m, hossza 10 optikai ciklus. A tiltott sáv szélessége 3 eV, $k_0a = 0.1$.

A (13) és (14) egyenletekkel adott eredményeinket több módon is ellenőriztük, és minden esetben érvényesnek találtuk. Kvadratikus diszperzió esetén, a síkhullámra szuperponált Gauss hullámcsomag esete analitikusan megoldható, és a (13) és (14) egyenletekkel adott határértékeket adja. A 2. ábra numerikus eredményt mutat, amikor a lézertér hatását a példa kedvéért két sáv figyelembe vételével számítottuk ki, és aztán direkt módon kiszámítottuk az egyes pontokon áthaladó áram integrálját a numerikusan értelemben vett hosszú idejű határesetben. Amint látható, a nagy $|x|$ értékekre érvényes határeset nagyon jó közelítéssel megegyezik a (13) és (14) eredményekkel.

4. Összefoglalás

Ebben a munkában a szilárdtestekben lézertérrel keltett áramokkal kapcsolatos eredményeinket foglaltuk össze. Megmutattuk, hogy ismerve az anyagi rendszer állapotát a kölcsönhatás után, a lézerimpulzus által elmozdított összes töltés analitikusan kiszámítható. Ez az eredmény jó kiindulópontot szolgáltat ahhoz, hogy elméleti úton megvizsgálhassuk, a lézertér paraméterei milyen mértékben határozhatók meg az általa elmozdított töltés megméréseivel.

Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönik a Fehér Lászlónak és Papp Györgynek a hasznos konzultációkat.

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben.

Munkánkat támogatták továbbá a TUDFO/47138-1/2019-ITM FIKP és a GINOP-2.3.2-15-2016-00036 számú pályázatok. Magát az ELI-ALPS projektet (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió és az Európai Regionális Fejlesztési Alap támogatja.

Irodalom

- [1] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro és D. A. Reis, *Nat. Physics* **7**, 138 (2011)
<https://doi.org/10.1038/nphys1847>
- [2] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, U. B. Szafruga, P. Agostini, L. F. Di- Mauro és D. A. Reis, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 167407 (2011)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.167407>
- [3] A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov et al., *Nature* **493**, 70 (2013)
<https://doi.org/10.1038/nature11567>
- [4] I Magashegyi, L. Zs. Szabó, P. Földi, *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, A116 (2018)
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.00A116>
- [5] P. Földi, M. G. Benedict, V. S. Yakovlev:, *New. J. Phys.* **15**, 063019 (2013)
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/15/6/063019>
- [6] P. Földi, *Phys. Rev. B* **96**, 035112 (2017)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.035112>

ORBITAL ANGULAR MOMENTUM OF HIGH HARMONICS GENERATED BY A NEON JET EXCITED WITH A STRONG TWISTED LASER PULSE

Szilárd Majorosi¹, Mihály G. Benedict¹, Szabolcs Hack^{1,2}, Attila Czirják^{1,2}

¹*Department of Theoretical Physics, University of Szeged, Tisza L. krt. 84, H-6720 Szeged, Hungary*

²*ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd., Dugonics tér 13, H-6720 Szeged, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.26>

1. Introduction

An interesting class of solutions to the Maxwell equations in the paraxial approximation are light beams with a specific amplitude distribution along their cross section in the form of a modulated Gaussian together with a twisted phase like $e^{i\ell\varphi}$, when going around a circle perpendicular to the direction of propagation. These beams can be shown to carry an angular momentum $\hbar\ell$ per photon, where ℓ can be any integer (positive negative or zero) [1-3]. This *orbital* angular momentum (OAM) is different from photon spin denoted usually by σ due to possible circular polarization which is restricted to be ± 1 or 0.

In this contribution we present results of calculations of the spatial structure of high harmonic radiation generated from a thin gas jet of Ne atoms excited by a strong multicycle near-infrared pulse, carrying a low value of nonzero orbital angular momentum. The responses of the individual atoms are calculated with the 3D time dependent Schrödinger equation (TDSE), resulting in a local secondary field essentially within the sample. The amplitudes and phases of the harmonics in the far-field, i.e. on the surface of a detector have been obtained by the Fraunhofer diffraction integral. The interesting effect is that the process of harmonic generation multiplies the ℓ of the excitation, i.e. the OAM of the q -th harmonic will be $q\ell$.

2. The mathematical formalism

Let us first recall the mathematical form of a Laguerre-Gaussian mode (LG), which has a focus at $z = 0$:

$$u_p^\ell(\rho, \varphi, z) = G(\rho, z) \times \left(\frac{\sqrt{2}\rho}{w(z)} \right)^{|\ell|} L_p^{|\ell|} \left[\frac{2\rho^2}{w^2(z)} \right] \exp \left\{ i\ell\varphi - (|\ell| + 2p) \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \right\}, \quad (1)$$

where $G(\rho, z)$ is an ordinary Gaussian beam including the propagation phase factor $e^{i(k_0 z - \omega t)}$. The beam waist w_0 , the beam size $w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2}$, the Rayleigh length $z_R = k_0 w_0^2/2$ and the phase front radius $R(z) = (1 + z_R^2/z^2)$ are identical with those of the Gaussian $G(\rho, z)$. There are two important differences, however. The radial amplitude distribution is modulated by the $L_p^{|\ell|}$ function, which is an associated Laguerre polynomial providing characteristic ring like distribution in the amplitude where the number of rings is $p + 1$ for $\ell > 0$. Additionally, there is also a characteristic twisted phase as shown by the factor $e^{i\ell\varphi}$ introducing a deviation from cylindrical symmetry in the amplitude, while the intensity still shows that symmetry.

Now we shall give the expression of a propagating pulse in a LG mode amplitude and phase profile. The Eq. (1) above is valid for a monochromatic carrier wave. For a pulse with a Gaussian envelope in time we shall simply take it with a delayed temporal argument $t - z/c$ and multiply it

with the LG mode, giving the expression

$$\mathcal{E}_{\ell,p}(\mathbf{r}, t) = F \cdot \exp \left(-2 \ln 2 \left(\frac{t - t_0 - \frac{z}{c}}{\tau} \right)^2 \right) |u_p^\ell(\mathbf{r})| \cos \left(\omega_0 (t - t_0) - \left(\arg(u_p^\ell(\mathbf{r})) + k_0 z \right) \right), \quad (2)$$

where F is the maximal field strength and τ is the temporal FWHM of the pulse. Accordingly, the exciting pulse arrives at the different locations of the sample delayed or faster, as determined by the ratio z/c , and it has phase of a space dependent carrier envelope phase (CEP) as determined by the argument $(\arg(u_p^\ell(\mathbf{r})) + k_0 z)$ of the LG mode. Propagation effects beyond this approximation will be neglected, we assume that the form of the pulse will not be distorted when passing through the sample.

Radiation of a single atom

The reponse of the sample will be built up as the appropriate superposition of the multitude of the individual atoms, and the latter will be calculated from a quantum mechanical model. A frequently used simplification for that is the strong field approximation (SFA), as introduced by Lewenstein and coworkers [4]. It yields an approximate analytic formula for the atomic dipole moment and using further approximations (saddle point method etc.) plus with a field a Coulomb correction it provides the near-field of the radiated pattern.

In this work we go beyond this SFA model, we calculate the atomic dipole moment and its acceleration ($a(t_1)$) by the numerical solution of the following 3D TDSE written in atomic units:

$$i \frac{\partial}{\partial t_1} \Psi = \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial z_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial \rho_1^2} + \frac{1}{\rho_1} \frac{\partial}{\partial \rho_1} \right) - \frac{Z^*}{\sqrt{z_1^2 + \rho_1^2}} - \mathcal{E}(t_1) \cdot z_1 + V_{\text{Im}}(\rho_1, z_1) \right] \Psi, \quad (3)$$

where the laser field $\mathcal{E}(t_1)$ is taken to be linearly polarized in the z_1 direction, and the interaction is in the dipole form with the single-active-electron approximation (SAE). The outermost electron is assumed to be bound by a Coulomb potential, where the specific value we use for the effective nuclear charge: $Z^* = 1.25929$ ensures that the ground state of this electron is equal to the first ionization energy of a Ne atom.

We solve (3) by our numerical method as described in [5], and we calculate the dipole acceleration as the quantum mechanical expectation value of the mean force acting on the electron according to the Ehrenfest theorem. This consists of the gradient of the atomic Coulomb potential figuring in Eq. (3) plus the effect of the external field. A macroscopic sample would require this procedure in a great number of times, using each time the exciting field at the specific location of an atom. In the expectation value the dominant part is determined by the wave function values close to the nucleus, therefore we restrict the the solutions $\Psi(t_1)$ to a box of size ± 100 a.u around the center. On its border we use a complex imaginary potential (denoted by $V_{\text{Im}}(\rho_1, z_1)$) in order to absorb the wave packets flowing out from the box.

The near-field within the sample

Now we shall consider the atomic sample as a continuous medium. The dipole acceleration $a(\mathbf{r}, t_1)$ due to the excitation $\mathcal{E}_{\ell,p}(\mathbf{r}, t)$ can be considered to be identical for a set of atoms within a volume element $dV(\mathbf{r})$ around the spatial point \mathbf{r} in the medium, as the distance between neighbouring atoms is much smaller than the characteristic length of essential changes of the exciting laser field. The field amplitude generated by the accelerated dipoles at a given frequency will be proportional to $\tilde{a}(\mathbf{r}, \omega)$, the temporal Fourier transform of $a(\mathbf{r}, t_1)$. Accordingly, the near-field within the sample shall be given by $A^{(\text{near})}(\mathbf{r}, \omega) \propto \tilde{a}(\mathbf{r}, \omega)$. In practice, this calculation is to be performed for a great number of discrete spatial points in the sample.

The procedure above is rather rigid and demanding, as the pulse shape of the excitation $\mathcal{E}_{\ell,p}(\mathbf{r}, t)$ is strictly determined in each spatial point. Therefore we have developed an efficient interpolation

procedure to handle the problem. As we are assuming that the exciting pulse is not changed within the sufficiently thin sample, the single atom response does not depend on the spatial distribution of the atoms, therefore the spatial dependence of the excitation can be replaced by its dependence on local the peak amplitudes F , the CEP-s and on time $\mathcal{E}_{\ell,p}(\mathbf{r}, t) \sim \mathcal{E}(F, \text{CEP}; t)$. We calculate the single atom responses to this field strength and after the interpolation process that we perform in a way corresponding to cylindrical coordinates, we obtain a discrete spatial distribution of the near-field amplitudes, as shown in the following scheme.

$$\mathcal{E}(F_i, \text{CEP}_j; t) \xrightarrow[\text{single-atom calculations}]{} \tilde{a}(F_i, \text{CEP}_j; \omega) \propto A^{(\text{near})}(F_i, \text{CEP}_j; \omega) \xrightarrow[\text{interpolation}]{} A^{(\text{near})}(\rho, \varphi, z; \omega). \quad (4)$$

We have used a fourth order Lagrange interpolation exploiting also the 2π periodicity of the CEP_j variable.

The great advantage of this procedure is that after calculating $\tilde{a}(F_i, \text{CEP}_j; \omega)$ for a given temporal shape of the excitation in a sufficiently detailed manner with respect to its discrete variables, we have at hand their values for any LG beam with the same carrier frequency.

Determination of the far-field at the surface of the detector

In order to determine the radiation field that arrives to the detector, the near-field originating in the sample must be propagated until the detector. As our sample is thin with respect to the wavelength, we may assume that each harmonic with wave number $k_q = qk_0$ propagates with the speed of light. We also assume that the detector, as well as the sample is placed along the z axis in a large distance compared to the size of the sample. We calculate the observed far-field with the following Fraunhofer diffraction integral over the sample volume:

$$A_q^{(\text{far})}(\beta, \varphi) = \frac{1}{\Delta Z'} \frac{k_q}{2\pi i} \frac{1}{r} \left(1 + \frac{i}{k_q r} \right) e^{ik_q r} \cos \beta \iiint A_q^{(\text{near})}(\rho', \varphi', z') \rho' \times \\ \exp\{ik_q(1 - \cos \beta)z' - ik_q \rho' \sin \beta \cos(\varphi - \varphi')\} d\rho' d\varphi' dz'. \quad (5)$$

The variables $\rho' \varphi' z'$ are the coordinates of the near-field in the sample, while r is the distance of the detector from the center of the sample, φ is the polar angle of the far-field coordinate and β is the diffraction angle. We have also introduced the notation $A_q^{(\text{near})}(\rho', \varphi', z') = A^{(\text{near})}(\rho', \varphi', z'; q\omega_0)$. Note that the integration extends to the z' variable, too, and in order to correct for the dimension the left hand side, it is divided by the width of the sample $\Delta Z' = z'_{\text{max}} - z'_{\text{min}}$. The term $e^{ik_q z'}$ in the integrand takes into account the difference between the phases of the secondary waves within the sample.

This integral formula makes it possible to consider separately the propagation of the different harmonics originating at least in a thin sample. (In practice the resulting field may contain noninteger q -s, so one has to perform the sampling with respect to q values.)

3. Results

Following the outline of the previous section, we performed the single-atom, the near-field and far-field calculations with the following configuration: we employed the u_0^1 LG beam with $\ell = 1$ orbital angular momentum and $w_0 = 30 \mu\text{m}$ beam waist, $\lambda = 797.47 \text{ nm}$ carrier wavelength (of period $T = 110 \text{ a.u.}$). Its peak electric intensity was $3.509 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ (corresponding to the peak electric field strength $F = 0.1 \text{ a.u.}$). This value was selected because it is the upper bound of the tunneling ionization regime of the single-active-electron Ne atom. The laser pulse was a many-cycle field with Gaussian envelope of $\tau = 10 \text{ fs}$ FWHM (i.e. 413.414 a.u.). We placed the center of the Ne sample (gas-jet) at the beam waist, and regarded it as infinitely thin. In the single-atom calculations the integration time interval encompassed 22 field-cycles (2420 a.u.). The resolution for the interpolation: the peak intensity F

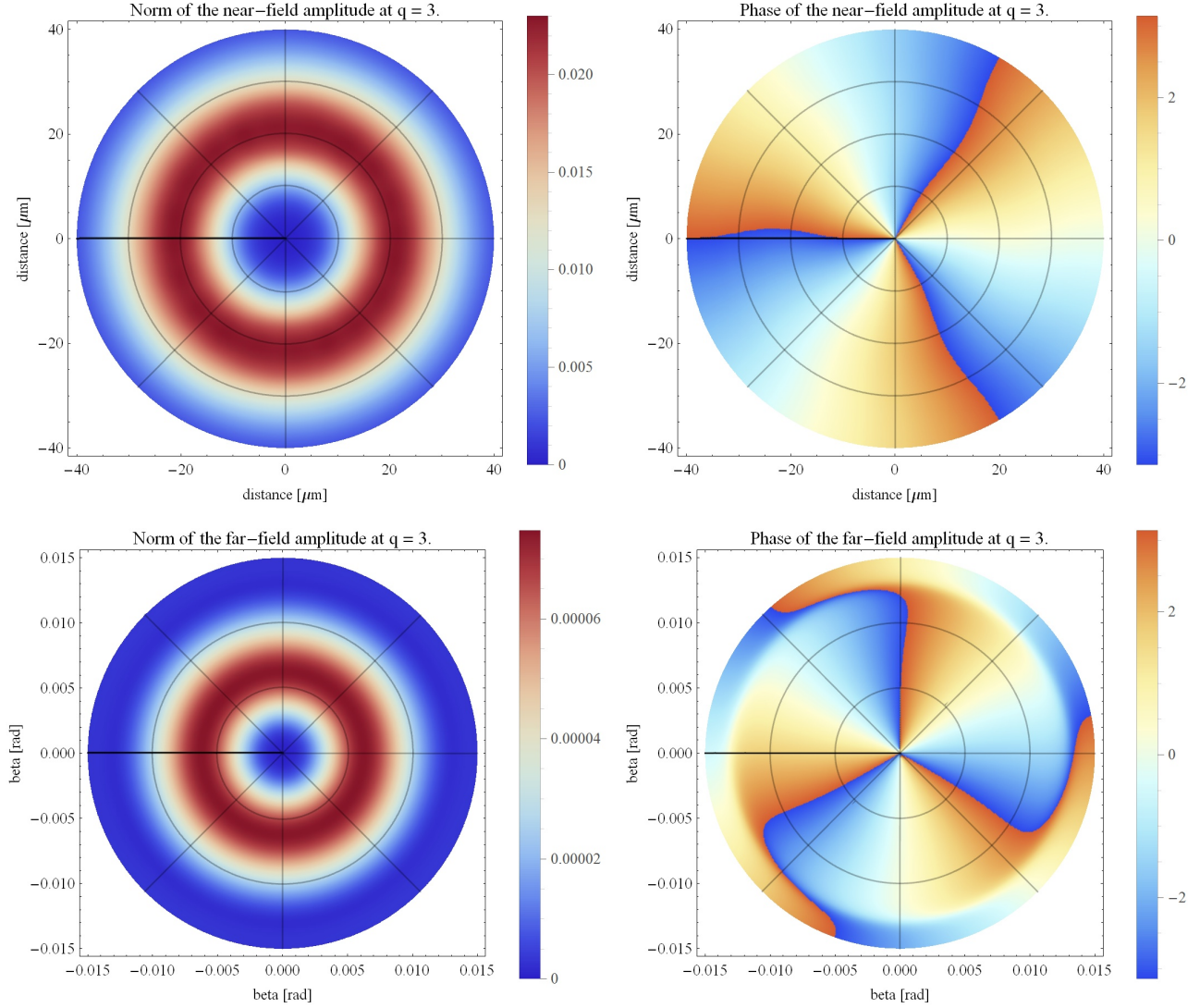


Figure 1. The spatial profiles of the $A_q^{(\text{near})}(\rho, \varphi, 0)$ (top) and the $A_q^{(\text{far})}(\beta, \varphi)$ (bottom) complex electric amplitudes of the generated 3rd harmonic in the Ne sample and at the detector surface, respectively. We plot their absolute values (on the left) and phases (on the right) separately.

was sampled 21 times, and the local CEP carrier-envelope phase 80 times, that added up to 1680 single-atom calculations. We also note that we also performed the calculations of a sample of width 50 μm , but it failed to change the far-field amplitudes in any meaningful way.

The single-atom high-order-harmonic (HHG) spectra that we got from the integration of the full TDSE show extra detail, that the traditional SFA methods do not. These have the familiar shape of a plateau but they have a much more complicated structure compared to the ones acquired from traditional SFA (not shown here). They contain not only odd harmonics, which leads to overall delicate spatial structures that are proven to be sensitive to the local laser pulse parameters and can be different in different parts of the HHG plateau. These features have direct implications of what we see in the macroscopic sample, however.

For the spatial profiles of the near- and far-field complex electric amplitudes, we can say the following. In the traditional SFA calculations the absolute values of these amplitudes are smooth and independent from the polar angle φ , and their phase is twisted as $\ell = q\ell$ for the q th harmonic. Also their HHG spectra contain only odd harmonics.

In our results, the first few harmonics up to 7th harmonic turned out to behave similarly (the 3rd

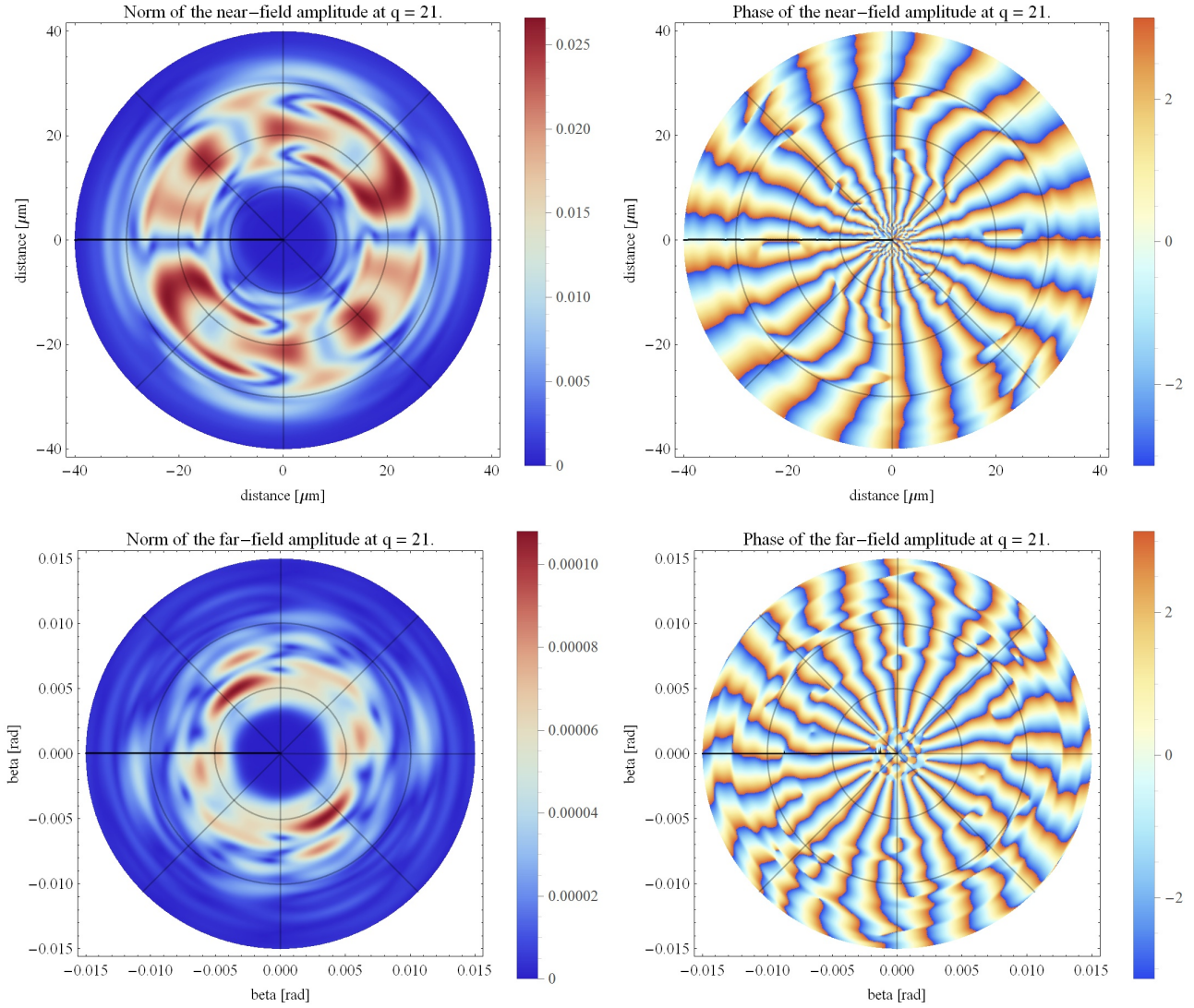


Figure 2. The spatial profiles of the $A_q^{(\text{near})}(\rho, \varphi, 0)$ (top) and the $A_q^{(\text{far})}(\beta, \varphi)$ (bottom) complex electric amplitudes of the generated 21th harmonic in the Ne sample and at the detector surface, respectively. We plot their absolute values (on the left) and phases (on the right) separately.

harmonic is shown in Figure 1). The absolute values of the near and far-fields are nearly rotationally symmetric rings, and we can see on the phase diagram that they are twisted 3 times, i.e. they have a dominant orbital angular momentum of $\ell_3 = 3$ in this case. At this part of the HHG spectra (which is commonly called the perturbative zone) our result are completely compliant with the traditional SFA results found in the literature. Where our method shows its merit is beyond the 7th harmonic, in the nonperturbative plateau. There, it paints a more interesting and complicated picture. To show this, we plotted the relevant near- and far-field of the generated 21th harmonic in Figure 2. The complex electric amplitude show an intricate pattern here, because the generated near-field radiation seems to be sensitive to the variations of the laser pulse's local F and CEP values. We can clearly see that the absolute values of the electric amplitudes clearly depend on the polar angle φ (i.e. the local CEP value), it also creates angular zero-crossings and waves. A consequence of this is that these structures can create additional branches in the corresponding phase diagrams (by changing the sign of the field), making them more complicated compared to their SFA counterparts.

In the far-field these details are smoothed out, but they can still break the expected rotational symmetry. If we look at the β diffraction angles where the far-field intensity peaks are located,

their values are consistent with the existing SFA calculations (about 6 mrad), however they are more complicated. The far-field phase for the odd harmonics here actually are also consistent: in the ring near the maximum intensity the dominant orbital angular momentum is $\ell = 21$ for the 21th harmonic (in the corresponding figure you can count the phase shifts manually). In places where the amplitude vanishes or just very weak the angular phase is ill-defined.

In our full TDSE based results, the odd harmonics turned out to be very special in this regard, compared to the even ones: the angular phase of the latter are more disorganized, with more branches, irregularities, and no clear dominant orbital angular momentum number. Our result seems to suggest that the generated near- and far-fields contain dominantly pulses with odd angular momenta for the $\ell = 1$ excitation (otherwise the multiplies of it). At frequencies which are not odd multiples of the fundamental harmonic, we saw a certain distribution of odd angular momenta (which results in an irregular phase). This would explain why the odd harmonics are special even in the full TDSE based calculations, and not contradict the SFA ones. This needs further investigation, however.

4. Conclusions

In this work we have computed the complex near-field and far-field electric field amplitudes of high harmonics generated in a Ne gas sample by a strong many-cycle Gaussian laser pulse. The near-field calculation was done by numerical integration of the 3D time-dependent Schrödinger-equation in the dipole-approximation and in the single-active-electron approximation for the Ne atom. Many of these single-atom computations were performed using a pulse with local values of a Laguerre-Gaussian mode cross section, and then the spatial distribution of the near-field harmonic radiation was calculated by interpolation, while the corresponding far-field on a detector was determined with the Fraunhofer diffraction integral. All nonlinear propagation effects were neglected.

We found that the far-field phases of the odd harmonics were consistent with the calculations using the Lewenstein model: in the ring near the maximum intensity the dominant orbital angular momentum for the odd q th harmonic turned out to be $q\ell$, while this was not true for any other harmonic. Because the actual spectra from the single-atom calculations were sensitive to the variations of the local carrier-envelope phase and peak electric field strength, this created a variety of angle dependent spatial structures in the near-field intensity, beyond approximately the 7th harmonic for the excitation we used. We have also found that in the far-field the propagation smoothed out the intensity and the phase profiles, and the orbital-angular-momenta could be more clearly observed at the diffraction angle of the far-field intensity maximum.

Acknowledgements

The project has been supported by the European Union, co-financed by the European Social Fund EFOP-3.6.2-16-2017-00005 - Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems It has been also granted by the European Regional Development Fund and the budget of Hungary in the framework of the project GINOP-2.3.2-15-2016-00036 titled Development and application of multimodal optical nanoscopy methods in life and material sciences.

References

- [1] L. Allen, M. W. Beijersbergen et al., Phys Rev. A. **45**, 8185 (1992)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.45.8185>
- [2] L. Rego, J. S. Roman et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 163202 (2016)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.163202>

- [3] W. Paufler, B. Böning and S. Fritzsche, *J. Opt.* **21**, 094001 (2019)
<https://doi.org/10.1088/2040-8986/ab31c3>
- [4] M. Lewenstein, Ph. Balcou et al., *Phys Rev A.* **49**, 2117 (1994)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>
- [5] Sz. Majorosi and A. Czirják, *Comp. Phys. Comm.* **208**, 9–28 (2016)
<https://doi.org/10.1016/j.cpc.2016.07.006>

BINÁRIS IDŐBELI MULTIPLEXELÉSEN ALAPULÓ PERIODIKUS EGYFOTONFORRÁSOK OPTIMALIZÁLÁSA

Mechler Mátyás¹, Bódog Ferenc¹ és Ádám Péter^{1,2}

¹*Pécsi Tudományegyetem, Természettudományi Kar, Fizikai Intézet,
H-7624 Pécs, Ifjúság útja 6.*

²*Wigner Fizikai Kutatóközpont, Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet, Kvantumoptika
és Kvantuminformatika Osztály, H-1121 Budapest, Konkoly-Thege Miklós út 29-33.*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.27>

1. Bevezetés

A periodikus egyfotonforrások fejlesztése egy jelenleg is intenzíven kutatott témaköre a kvantumoptikának. Az említett források fejlesztését számos lehetséges alkalmazásuk indokolja, melyek közül példaként említhető az optikai kvantumszámítás [1], kvantumkulcsszétosztás [2] és különböző kvantumoptikai kísérletek [3]. Több különböző fizikai rendszerre alapozva valósítottak már meg egyfotonforrásokat, ezek közül a leggyakrabban vizsgált rendszerek a spontán parametrikus lekonverzió (SPL) folyamatára épülő, korrelált fotonpárokat adó valószínűségi források. Ezekben az egyik foton (jelző foton) detektálásával időbeli és térbeli információt szerzünk a társfotonról, amelyet így felhasználhatunk.

Az említett berendezésekben térbeli [4–7] vagy időbeli [8–11] multiplexeléssel érhető el az ideálshoz közeli működés. A multiplexelő rendszerekkel ideális esetben tökéletes periodikus egyfotonforrást kaphatnánk, azonban a multiplexelő rendszer méretével, az alkalmazott optikai elemek számával arányos veszteségek mindkét multiplexelő rendszerben lerontják a várt eredményt.

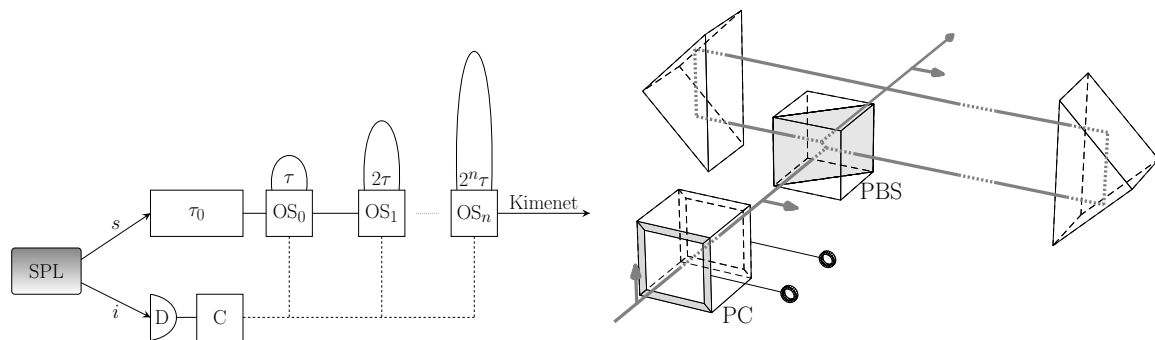
A [12] közleményünkben megadtuk a multiplexelésen alapuló periodikus egyfotonforrások statisztikai leírását, melynek segítségével több különböző multiplexelt egyfotonforrás optimalizálását végeztük el. A részletes statisztikai elemzésből kiderül, hogy mindkét multiplexelés esetében létezik optimális rendszerméret, amely mellett a berendezés a maximális egyfoton-valószínűséget adja. Javasoltunk továbbá egy bináris időbeli multiplexelésen alapuló forrást, amely az analízis szerint valós kísérleti paraméterek mellett jelenleg a legmagasabb egyfoton-valószínűséget adja. A [13] cikkünkben kiterjesztettük a leírásmódot kombinált multiplexelésen alapuló egyfotonforrásokra. Ezekben a rendszerekben egyaránt alkalmaznak térbeli, és időbeli multiplexelést. Mindkét említett publikációban küszöbdetektorokkal működtetett egyfotonforrásokat vizsgáltunk, amelyek csak a fotonok jelenlétét rögzítik. A statisztikus leírást a [14]-es közleményünkben általánosítottuk fotonszámfeloldó detektorok esetére. Ezek a detektorok nemcsak a fotonok jelenlétét, hanem a detektált fotonok számát is képesek meghatározni. A részletes statisztikai elemzést szimmetrikus térbeli multiplexelésen alapuló egyfotonforrásokra végeztük el.

Ebben a kéziratban az általunk javasolt bináris időbeli multiplexelésen alapuló egyfotonforrás optimalizálását végezzük el abban az esetben, ha fotonszámfeloldó detektorokat alkalmazunk a jelző fotonok észlelésére.

2. Bináris időbeli multiplexelés

Az 1. ábra mutatja a bináris időbeli multiplexelésen alapuló egyfotonforrás sematikus ábráját. A fotonpárok SPL forrásban keletkeznek, melyet impulzusüzemű, vagy folytonos üzemű lézerrel gerjesztünk. Az SPL forrásból kilépő i -vel jelölt jelző fotonok a D-vel jelölt detektorra vannak vezetve. Az s -el jelölt jelfotonok τ_0 késleltetés után lépnek be a multiplexerbe. A jelfotonokat a különböző τ , 2τ , $4\tau \dots$ hosszúságú késleltetőutakba az OS_n -el jelölt optikai kapcsolók vezetik be. Látható, hogy a késleltetések hossza kettő hatványai szerint növekszik, innen a bináris időbeli multiplexelés elnevezés. Az optikai kapcsolókat a C vezérlőegység konfigurálja a detektorból érkező információk alapján. Az időbeli késleltetés során egy detektált fotonon annyit késleltetünk, hogy az előre meghatározott periódusidő végére lépjen ki a rendszerből.

A [12] közleményünkben javasoltunk egy hagyományos optikai eszközökből felépíthető bináris időbeli multiplexelésen alapuló egyfotonforrást. A javasolt rendszerben a késleltetőegységek az 1. ábrán látható módon épülnek fel. Az optikai kapcsolót ebben a rendszerben a PC-vel jelölt Pockels-cella, valamint a PBS-el jelölt polarizációs nyalábosztóval valósítjuk meg. A foton vertikális polarizációval érkezik a Pockels-cellához. A polarizáció megváltoztatásával vezethetjük be a fotont a késleltetőegységbe.



1. ábra. A bináris időbeli multiplexelés sematikus ábrája (balra). Hagyományos optikai elemekből felépíthető késleltetőegység (jobbra). Jelölések: PC – Pockels-cella; PBS – polarizációs nyalábosztó; SPL – spontán parametrikus lekonverzió; OS – optikai kapcsoló; D - detektor; C – vezérlőegység.

3. A multiplexelt egyfotonforrások statisztikai leírása

Tekintsünk egy térben vagy időben multiplexelt egyfotonforrást, amelyben a multiplexelt egységek száma (nemlineáris források vagy időablakok száma) N . Tegyük fel, hogy az n -edik multiplexelt egységben j fotonpár érkezik a nemlineáris forrásból, és a multiplexer bemenetein egy előre definiált l detektált fotonszám esetén léphetnek be jelfotonok. Annak a valószínűsége, hogy a beérkező j foton közül i éri el a forrás kimenetét, a következőképpen határozható meg [14]:

$$P_i^{(S)} = \left(1 - \sum_{l \in S} P^{(D)}(l)\right)^N \delta_{i,0} + \sum_{n=1}^N \left[\left(1 - \sum_{l \in S} P^{(D)}(l)\right)^{n-1} \times \sum_{l \in S} \sum_{j=\max(i,l)}^{\infty} P^{(D)}(l|j) P^{(\lambda)}(j) V_n(i|j) \right]. \quad (1)$$

Az egyenletben $P^{(D)}(l)$ jelöli l foton detektálásának valószínűségét, $P^{(D)}(l|j)$ jelöli azt a feltételes valószínűséget, hogy a detektor l fotont észlel, feltéve, hogy j foton érkezett a felületére, $P^{(\lambda)}(j)$

pedig j fotonpár keletkezésének a valószínűségét jelöli. A $P^{(D)}(l)$ valószínűséget a következőképpen írhatjuk:

$$P^{(D)}(l) = \sum_{j=l}^{\infty} P^{(D)}(l|j)P^{(\lambda)}(j) = \sum_{j=l}^{\infty} \binom{j}{l} V_D^l (1 - V_D)^{j-l} P^{(\lambda)}(j), \quad (2)$$

ahol V_D a detektorhatásfok. A számításaink során a keletkező fotonpárok számát Poisson-eloszlásúnak feltételeztük. Az általános egyenletben megjelenő $V_n(i|j)$ kifejezés annak a valószínűsége, hogy i foton éri el az egyfotonforrás kimenetét, feltéve, hogy az n -edik multiplexelt egységből j foton érkezett, melyet az 1. ábrán bemutatott bináris időbeli multiplexelés esetén a következőképpen számíthatunk ki:

$$V_n(i|j) = \binom{j}{i} V_n^i (1 - V_n)^{j-i}, \quad \text{ahol} \quad V_n = V_b V_{re}^h V_t^{l-h} V_p^{(N-n)/N}. \quad (3)$$

A kifejezésben V_n az n -edik időablakhoz tartozó transzmisszió valószínűsége, amelyben V_{re} és V_t a polarizációs nyálábosztók reflexiós és transzmissziós koeficiensei, V_p a terjedéshez tartozó veszteség, amely tartalmazza a Pockels-cellán való áthaladáshoz tartozó veszteséget, V_b pedig egy általános, időablaktól független veszteségi paraméter (fotonok összegyűjtésének valószínűsége, becsatolási veszteség stb.), h pedig $N - n$ Hamming-súlya.

Az általános kifejezésben az S halmaz tartalmazza azokat az előre meghatározott fotonszámokat, amelyek rögzítése esetén a jelfotonok beléphetnek a multiplexerbe. Ez a halmaz egy detektálási stratégiát határoz meg, amelyet csak fotonszámfeloldó detektorokkal lehet megvalósítani. Ebben a munkában $S = \{1, 2, 3, \dots, J_{\max}\}$ alakú detektálási stratégiákat vesszünk figyelembe.

4. Eredmények

Ebben a szakaszban mutatjuk be az optimalizálás eredményeit. Az optimalizálás során elsőként rögzítjük az egyfotonforrást jellemző összes kísérleti paramétert és a detektálási stratégiát, kezdve $S = \{1\}$ -el. Ezt követően a multiplexelt időablakok számát kettő hatványai szerint növelve, minden N értékhez meghatározzuk a bemeneti fotonszám λ_{opt} optimális átlagos értékét. A multiplexelt időablakok azon száma, amelyhez a legmagasabb egyfoton-valószínűség tartozik, az lesz az N_{opt} optimális rendszerméret. Ezt követően megismételjük az optimalizálást $S = \{1, 2\}$, $S = \{1, 2, 3\} \dots$ detektálási stratégiákat feltételezve. A különböző detektálási stratégiák mellett meghatározott egyfoton-valószínűségek abszolút maximuma adja meg az optimális detektálási stratégiát (S_{opt}).

Az optimalizálást kísérletileg elérhető paramétertartományokon végezzük. A polarizációs nyálábosztók reflexiós együtthatóját a $0.9 \leq V_{re} \leq 0.996$, a transzmissziós együtthatót pedig a $0.9 \leq V_t \leq 0.97$ tartományon vizsgáljuk. A fotonszámfeloldó detektorok hatásfokát a $0.6 \leq V_d \leq 0.98$ tartományon vizsgáljuk. A terjedési veszteség értékét $V_p = 0.95$ értéken rögzítjük, a V_b általános veszteségi paramétert pedig egységnek vesszük, hiszen ez a rendszer kvalitatív tulajdonságait nem változtatja meg.

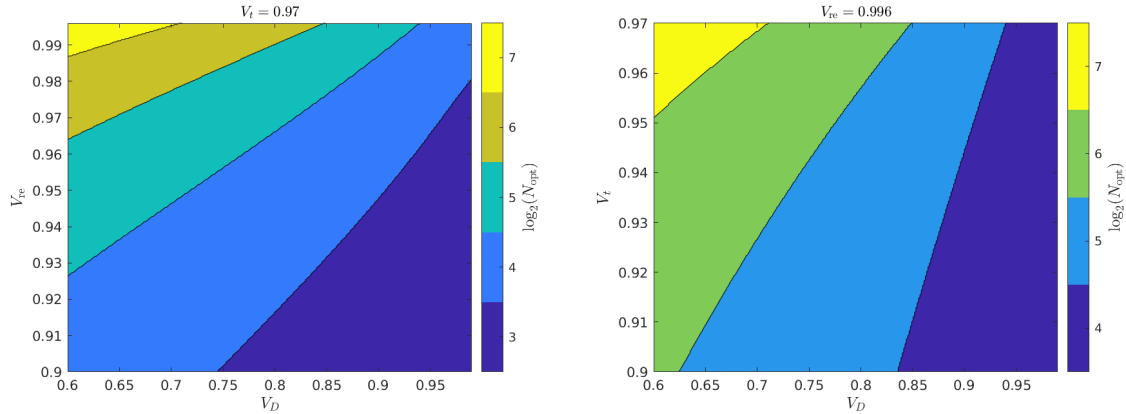
Az optimalizálás eredményeit az 1. táblázat tartalmazza. A táblázatban vizsgált tartományon az optimális detektálási stratégia végig $S = \{1\}$. A táblázatból látszik, hogy növekvő V_t és V_{re} értékekhez növekvő optimális rendszerméret tartozik, ugyanakkor az optimális bemeneti fotonszám értéke csökken. Amennyiben N_{opt} értéke változatlan, az átlagos bemeneti fotonszám V_t és V_{re} növekvésével akkor is csökken, hiszen alacsonyabb veszteségek mellett a fotonok egyre kisebb valószínűséggel vesznek el a multiplexelő rendszerben. N_{opt} ugrásakor λ_{opt} -ban is nagyobb ugrás van, hiszen ekkor kétszer annyi multiplexelt időablakból érkehetnek fotonok. Ez nem más, mint a források multiplexelésének alapelve, azaz, hogy egy multiplexelt egységben a generált fotonpárok átlagos számának csökkentésével csökkentjük több fotonpár keletkezésének a valószínűségét, miközben a multiplexelt egységek számának növelésével azt a valószínűséget csökkentjük, hogy egyáltalán ne érkezzen foton.

V_t	V_{re}	$V_D = 0.6$			$V_D = 0.8$			$V_D = 0.9$			$V_D = 0.98$		
		N_{opt}	$P_{1,max}^{EFD}$	λ_{opt}	N_{opt}	$P_{1,max}^{EFD}$	λ_{opt}	N_{opt}	$P_{1,max}^{EFD}$	λ_{opt}	N_{opt}	$P_{1,max}^{EFD}$	λ_{opt}
0.90	0.90	16	0.587	0.490	8	0.635	0.751	8	0.660	0.818	8	0.680	0.950
	0.92	16	0.615	0.476	8	0.659	0.735	8	0.688	0.808	8	0.713	0.947
	0.94	16	0.643	0.463	8	0.683	0.719	8	0.717	0.798	8	0.746	0.944
	0.96	32	0.672	0.296	16	0.719	0.465	8	0.746	0.787	8	0.781	0.942
	0.98	32	0.714	0.290	16	0.757	0.461	16	0.785	0.551	8	0.816	0.939
	0.99	32	0.735	0.287	16	0.776	0.459	16	0.808	0.553	16	0.840	0.841
	0.996	64	0.749	0.220	32	0.791	0.344	16	0.821	0.553	16	0.856	0.843
0.92	0.90	16	0.599	0.461	8	0.645	0.725	8	0.671	0.790	8	0.693	0.936
	0.92	16	0.628	0.451	8	0.669	0.711	8	0.699	0.782	8	0.725	0.935
	0.94	16	0.656	0.440	16	0.696	0.433	8	0.729	0.774	8	0.759	0.933
	0.96	32	0.691	0.271	16	0.734	0.434	8	0.758	0.765	8	0.794	0.932
	0.98	32	0.733	0.268	16	0.772	0.433	16	0.801	0.503	8	0.830	0.929
	0.99	64	0.757	0.183	32	0.794	0.294	16	0.823	0.508	16	0.855	0.794
	0.996	64	0.774	0.184	32	0.810	0.296	16	0.837	0.510	16	0.871	0.800
0.94	0.90	16	0.612	0.436	8	0.655	0.699	8	0.682	0.760	8	0.705	0.918
	0.92	16	0.641	0.428	8	0.679	0.687	8	0.711	0.755	8	0.738	0.920
	0.94	16	0.670	0.420	16	0.711	0.404	8	0.740	0.749	8	0.772	0.920
	0.96	32	0.711	0.250	16	0.749	0.407	16	0.772	0.446	8	0.808	0.919
	0.98	64	0.754	0.155	32	0.789	0.250	16	0.817	0.460	8	0.844	0.918
	0.99	64	0.783	0.157	32	0.816	0.255	16	0.840	0.466	16	0.870	0.726
	0.996	64	0.801	0.158	32	0.832	0.258	16	0.854	0.469	16	0.886	0.738
0.96	0.90	16	0.625	0.414	8	0.665	0.674	8	0.693	0.731	8	0.717	0.896
	0.92	16	0.654	0.408	8	0.690	0.664	8	0.723	0.729	8	0.751	0.901
	0.94	32	0.689	0.233	16	0.727	0.379	8	0.752	0.725	8	0.786	0.904
	0.96	32	0.732	0.234	16	0.766	0.383	16	0.789	0.408	8	0.821	0.905
	0.98	64	0.783	0.138	32	0.811	0.223	16	0.834	0.423	16	0.859	0.591
	0.99	64	0.813	0.140	32	0.839	0.228	16	0.857	0.429	16	0.886	0.630
	0.996	128	0.833	0.089	64	0.856	0.146	32	0.875	0.265	16	0.902	0.650
0.97	0.90	16	0.632	0.403	8	0.670	0.662	8	0.699	0.717	8	0.723	0.883
	0.92	16	0.661	0.398	16	0.698	0.363	8	0.729	0.715	8	0.757	0.890
	0.94	32	0.699	0.225	16	0.735	0.368	8	0.759	0.713	8	0.792	0.895
	0.96	32	0.743	0.227	16	0.774	0.372	16	0.797	0.392	8	0.828	0.897
	0.98	64	0.798	0.132	32	0.823	0.212	16	0.843	0.406	16	0.867	0.536
	0.99	128	0.830	0.078	32	0.851	0.217	32	0.868	0.233	16	0.894	0.576
	0.996	128	0.852	0.080	64	0.871	0.130	32	0.886	0.241	16	0.910	0.599

1. táblázat. Optimalizált fotonszámfeloldó detektorokkal felszerelt bináris időbeli multiplexelésen alapuló egyfotonforrások. Az elérhető $P_{1,max}^{EFD}$ maximális egyfoton-valószínűségeket a hozzájuk tartozó N_{opt} optimális rendszermérettel és λ_{opt} optimális átlagos bemeneti fotonszámmal tüntettük fel V_{re} reflexiók, V_t transzmissziós koefficiensek, valamint különböző V_D detektorhatásfokok mellett. Az egyfoton-detektálás (EFD) az $S = \{1\}$ detektálási stratégiát jelöli. A táblázatban $V_b = 1$ alaptranszmissziót, valamint $V_p = 0.95$ terjedési veszteséget feltételeztünk.

A detektorhatásfok növelésével ugyanakkor az optimális rendszerméret csökken, az átlagos bemenő fotonszám optimális értéke pedig növekszik. Ennek az az oka, hogy növekvő hatásfok mellett a detektorok egyre inkább képesek kiszűrni azokat a lekonverziós eseményeket, amikor egyetlen fotonpár keletkezik. Az optimális rendszerméretéről eddig elmondottakat szemlélteti a 2. ábra, ahol bal oldalon rögzített $V_t = 0.97$ érték mellett ábrázoltuk $\log_2(N_{opt})$ értékét V_D és V_{re} függvényében, jobb

oldalon pedig rögzített $V_{re} = 0.996$ érték mellett V_D és V_t függvényében.

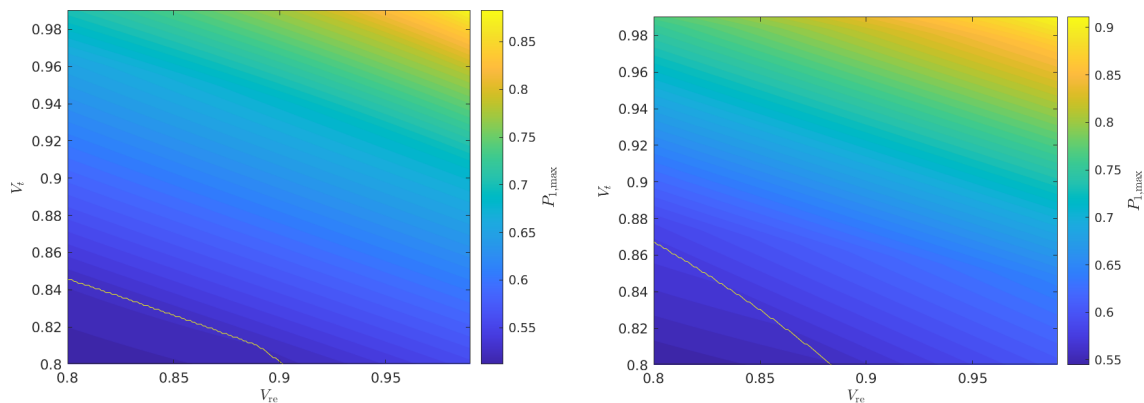


2. ábra. Az időbeli multiplexerben használt szintek optimális száma ($\log_2 N_{opt}$) a V_D detektorhatásfok és a routerre jellemző V_{re} reflexiós koeficiens (balra), illetve a V_t transzmissziós koeficiens (jobbra) függvényében. Az ábrákon a terjedési veszteség értéke $V_p = 0.95$, a bal oldali ábrán a router transzmissziós koeficiense $V_t = 0.97$, a jobb oldali ábrán a router reflexiós koeficiense $V_{re} = 0.996$.

A táblázatban vizsgált tartományon az egyfoton-valószínűségek $0.587 \leq P_{1,max} \leq 0.91$ között változnak. Összehasonlításképpen, $V_D = 0.98$ hatásfokú küszöbdetektor alkalmazása mellett, az elérhető legjobb kísérleti paramétereket feltételezve ($V_{re} = 0.996$, $V_t = 0.97$, $V_p = 0.95$) $P_{1,max}^{KD} = 0.857$ maximális egyfoton-valószínűséget érhetnénk el $N_{opt} = 128$ multiplexelt időablakkal. Ugyanezen paraméterekkel a táblázatból látható, hogy fotonszámfeloldó detektorral $P_{1,max} = 0.91$ egyfoton-valószínűség érhető el mindössze $N_{opt} = 16$ multiplexelt időablakkal.

A multiplexelt források kísérleti megvalósításának szempontjából a fotonszámfeloldó detektorok alkalmazásának tehát az az előnye, hogy képesek növelni az elérhető maximális egyfoton-valószínűséget, kisebb rendszerméret mellett. A vizsgált időbeli multiplexer esetében a kisebb rendszerméret költséghatékonyság mellett további előnye, hogy a forrás ismétlési frekvenciája is nagyobb lehet.

Ahogy korábban említettük, a táblázatban vizsgált tartomány egészen az $S = \{1\}$ az optimális



3. ábra. A $P_{1,max}$ maximális egyfoton-valószínűség a polarizációs nyálábosztó paramétereinek, azaz a V_{re} reflexiós és V_t transzmissziós koeficienseknek a függvényében. A folytonos vonal az optimális detektálási stratégiákat választja el: a vonal felett az egyfoton-detektálás, a vonal alatt a maximum két foton detektálása az optimális. Az ábrák paramétereit: a terjedési veszteséget jellemző koeficiens $V_p = 0.95$, a detektorhatásfok $V_d = 0.8$ (balra), $V_d = 0.98$ (jobbra).

detektálási stratégia. A detektálási stratégia viselkedésének megértése érdekében a 3. ábrán kiterjesztettük a V_t és V_{re} paraméterekben vizsgált tartományt ($0.8 \leq V_t, V_{re} \leq 0.99$). Az ábrákon $P_{1,max}$ értékét ábrázoltuk V_{re} és V_t függvényében különböző, rögzített V_D értékekre. Szaggatott vonallal választottuk el az $S = \{1, 2\}$, valamint $S = \{1\}$ detektálási stratégiákat. Az ábrákon látható, hogy nagyobb veszteségek esetén (szaggatott vonal alatti terület) érdemes a multiplexelő rendszerbe kettő fotont is beengedni, hiszen ekkor már egyikük az áthaladás során jó eséllyel elveszik. A legmagasabb elérhető $V_D = 0.98$ detektorhatásfokot feltételezve, a $V_{re} = V_t = 0.8$ paraméterek mellett küszöb-detektorral $P_{1,max}^{KD} = 0.524$, $S = \{1\}$ detektálási stratégiával $P_{1,max}^{EFD} = 0.521$, $S = \{1, 2\}$ detektálási stratégiával pedig $P_{1,max}^{Sopt} = 0.545$ maximális egyfoton-valószínűség érhető el. Ez azt jelenti, hogy a fotonszámfeloldó detektorok megfelelő konfigurálásával ezen a tartományon is $\Delta_P = 0.02$ egyfoton-valószínűség növekedés érhető el.

A közleményben a bináris időbeli multiplexelésen alapuló periodikus egyfotonforrások optimalizálását végeztük el fotonszámfeloldó detektorokat feltételezve. Kísérletileg elérhető paramétertartományon megmutattuk, hogy fotonszámfeloldó detektorokat alkalmazva magasabb egyfoton-valószínűség érhető el kevesebb multiplexelt egységgel, mintha a pusztán fotonok jelenlétét rögzíteni képes küszöb-detektorokat alkalmaznánk.

Köszönetnyilvánítás

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 számú, „Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben” című projekt és az NKFIH K124351 és 2017-1.2.1-NKP-2017-00001 HunQuTech számú projektjei támogatták.

Hivatkozások

- [1] E. Knill, R. Laflamme és G. J. Milburn, *Nature* **409**, 46 (2001).
<https://doi.org/10.1038/35051009>
- [2] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres és W. K. Wootters, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1895 (1993).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.1895>
- [3] C. C. Gerry, *Phys. Rev. A* **59**, 4095 (1999).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.59.4095>
- [4] A. L. Migdall, D. Branning és S. Castelletto, *Phys. Rev. A* **66**, 053805 (2002).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.66.053805>
- [5] J. H. Shapiro és F. N. Wong, *Opt. Lett.* **32**, 2698 (2007).
<https://doi.org/10.1364/OL.32.002698>
- [6] X. S. Ma, S. Zotter, J. Kofler, T. Jennewein és A. Zeilinger, *Phys. Rev. A* **83**, 043814 (2011).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.043814>
- [7] R. J. A. Francis-Jones, R. A. Hoggarth és P. J. Mosley, *Optica* **3**, 1270 (2016).
<https://doi.org/10.1364/OPTICA.3.001270>
- [8] T. B. Pittman, B. C. Jacobs és J. D. Franson, *Phys. Rev. A* **66**, 042303 (2002).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.66.042303>

- [9] J. Mower és D. Englund, *Phys. Rev. A* **84**, 052326 (2011).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.052326>
- [10] R. A. Hoggarth, R. J. A. Francis-Jones és P. J. Mosley, *J. Opt.* **19**, 125503 (2017).
<https://doi.org/10.1088/2040-8986/aa979e>
- [11] F. Kaneda és P. G. Kwiat, *Sci. Adv.* **5**, (2019).
<https://doi.org/10.1126/sciadv.aaw8586>
- [12] P. Adam, M. Mechler, I. Santa és M. Koniorczyk, *Phys. Rev. A* **90**, 053834 (2014).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.053834>
- [13] F. Bodog, P. Adam, M. Mechler, I. Santa és M. Koniorczyk, *Phys. Rev. A* **94**, 033853 (2016).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.033853>
- [14] F. Bodog, M. Mechler, M. Koniorczyk és P. Adam, *Phys. Rev. A* **102**, 013513 (2020).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.102.013513>

ITERÁLT HARMADFOKÚ KVANTUMINFORMATIKAI PROTOKOLLOK

Portik Attila^{1,2}, Kálmán Orsolya², Kiss Tamás²

¹*Eötvös Loránd Tudományegyetem Természettudományi Kar,
1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A*

²*Wigner Fizikai Kutatóközpont, 1121 Budapest, Konkoly-Thege M. út 29-33.*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.28>

Egy olyan kvantuminformaticai protokollt vizsgálunk, amely egy összefonó unitér kapu, majd mérés és a mérés eredményén alapuló szelekció homogén kezdőállapotú qubit-sokaságon történő ismételt alkalmazásán alapul [1]. Az így létrejövő folyamat megfeleltethető egy komplex polinomok hányadosaként előálló komplex függvény iterált dinamikájának, ha a qubitet egy komplex számmal reprezentáljuk, ezért bizonyos kezdőfeltételek esetén kaotikus viselkedésre vezet [2]. Az ilyen nem-lineáris folyamatoknak számos kvantuminformaticai alkalmazása lehet, mint például a kvantumállapotok tisztítása [3] vagy a kvantumállapot-megkülönböztetés [4,5,6]. Egy másik, érzékenyséjükön alapuló gyakorlati felhasználásuk lehet a kvantum-áramkörök, kvantum-chipek tesztelése, a fellépő zaj és hibaforrások feltérképezése.

Az általunk tekintett sémában a homogén kezdőállapotú qubit-sokaságból (amelyben a qubitek ugyanolyan állapotúak és egymástól függetlenek) hármával veszünk elemeket, amelyeket egy unitér művelettel összefonunk, majd a háromból két qubitet megmérünk. Ha a megmért qubiteket a kívánt állapotban találjuk, akkor a harmadik qubitet megtartjuk és rajta még egy további transzformációt végzünk (ellenkező esetben eldobjuk a harmadik qubitet is). A folyamatot az ilyen módon transzformált qubitekből képezett hármason tovább ismétljük, azaz iteráljuk.

Feltesszük tehát, hogy kezdetben van három független qubitünk, mindegyik ugyanabban a $|\psi_0\rangle = N_z(|0\rangle + z|1\rangle)$ kezdeti állapotban, ahol $z \in \hat{\mathbb{C}} = \mathbb{C} \cup \infty$. Ekkor a teljes rendszer állapota:

$$|\Psi\rangle = |\psi_0\rangle \otimes |\psi_0\rangle \otimes |\psi_0\rangle = N_z^3(|000\rangle + z|001\rangle + z|010\rangle + z^2|011\rangle + z|100\rangle + z^2|101\rangle + z^2|110\rangle + z^3|111\rangle).$$

A qubitek összefonását két controlled-NOT (CNOT) kapuval végezzük. A CNOT egy két-qubites művelet, amely a kontroll qubit állapotától függően változtatja meg a cél-qubit állapotát: ha a kontroll-qubit állapota $|1\rangle$, akkor a cél-qubit állapota ellenkezőre vált, ha a kontroll-qubit állapota $|0\rangle$, akkor a cél-qubit állapota nem változik meg. Közismert, hogy a CNOT operátor szorzatállapotokból összefonódottakat hoz létre. Ahhoz, hogy mindhárom qubitet összefonjuk, két CNOT műveletre van szükségünk. A mi esetünkben mindkét CNOT ugyanazt a qubitet használja kontrollként (legyen ez az első qubit), a cél qubitek pedig különböznek (egyik esetben a 2-es, a másikban a 3-as). Az említett két CNOT egymás utáni alkalmazásával létrejövő műveletet pedig úgy is felfoghatjuk, mint a CNOT transzformáció három qubitre általánosított verzióját, melynek a mátrix reprezentációja a következő-

képpen adható meg:

$$G_{\text{CNOT}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

ahol a bázisvektorok sorrendjét $\{|000\rangle, |001\rangle, |010\rangle, |011\rangle, |100\rangle, |101\rangle, |110\rangle, |111\rangle\}$ -nek vettük. A három qubit állapota ezen transzformáció hatására a következőképpen változik meg:

$$G_{\text{CNOT}}|\Psi\rangle = N_z^3(|000\rangle + z|001\rangle + z|010\rangle + z^2|011\rangle + z^3|100\rangle + z^2|101\rangle + z^2|110\rangle + z|111\rangle).$$

Az általunk vizsgált sémában von Neumann méréseket tekintünk a 2-es és 3-as qubiten és az 1-es qubitet csak abban az esetben tartjuk meg, ha mindkét mérés eredménye 0 volt (ez természetesen csak bizonyos valószínűséggel valósul meg a konkrét mérések során). Ekkor a megtartott qubit állapota:

$$|\psi'\rangle = N'_z(|0\rangle + z^3|1\rangle).$$

A CNOT transzformációk és a méréseknek megfelelő szelekció elvégzése a $g : \hat{\mathbb{C}} \rightarrow \hat{\mathbb{C}}, g(z) = z^3$ komplex leképezésnek felel meg, amelynek ismételtetése egy diszkrét idejű determinisztikus nemlineáris dinamikára vezet, amely önmagában nem kifejezetten izgalmas. Ezért minden lépésben beiktatunk még egy egy-qubites unitér transzformációt, melyet a megtartott qubiteken hajtunk végre. Ezt az unitér transzformációt – az esetünkben érvényes szimmetria-tulajdonságokat is figyelembe véve – a következőképpen paraméterezhetjük

$$U(p) = \frac{1}{\sqrt{1+|p|^2}} \begin{pmatrix} 1 & p \\ -\bar{p} & 1 \end{pmatrix},$$

ahol $p = \tan(\xi)e^{-i\varphi} \in \mathbb{C}$, és \bar{p} a p komplex konjugáltja. Ennek a műveletnek a beiktatása után a megtartott qubit állapota

$$|\psi_1\rangle = N''_z \left(|0\rangle + \frac{z^3 + p}{1 - \bar{p}z^3} |1\rangle \right)$$

lesz, így az iterációs lépést a következő komplex racionális törtfüggvény reprezentálja

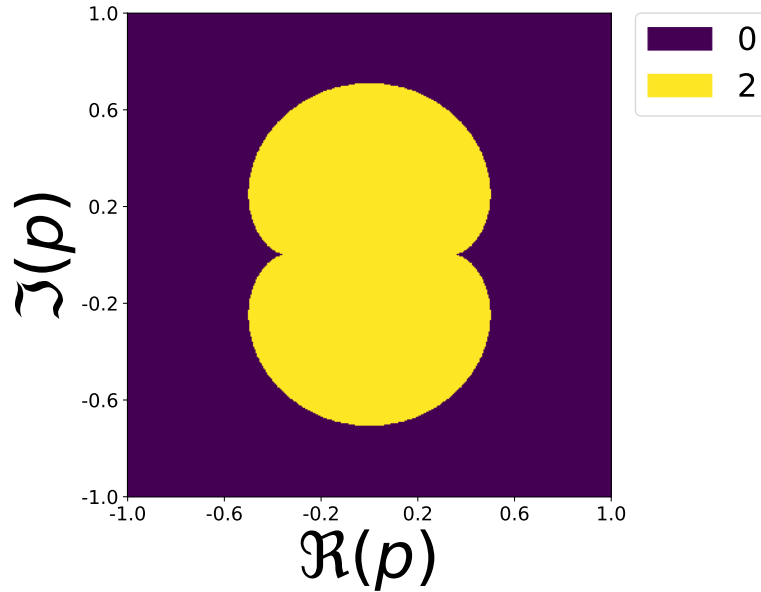
$$f_p(z) = \frac{z^3 + p}{1 - \bar{p}z^3}. \quad (1)$$

Ahhoz, hogy a kvantumrendszer viselkedését megismerjük elég ezt a komplex leképezést tanulmányoznunk. Az $f_p(z)$ függvény iterációja meglehetősen összetett dinamikai viselkedést mutat, e dinamika néhány tulajdonságát mutatjuk itt be.

Az $f_p(z)$ leképezésnek négy fixpontja van, melyek meghatározásához az $f_p(z) = z$ egyenletet kell megoldani, ami a

$$\bar{p}z^4 + z^3 - z + p = 0$$

komplex együtthatós negyedfokú polinom-egyenletre vezet, amelynek négy komplex megoldása van általános p esetén. A függvény $f'_p(z)$ deriváltjának a z_0 fixpontban felvett értéke alapján a fixpont lehet semleges ($|f'_p(z_0)| = 1$), taszító ($|f'_p(z_0)| > 1$), vagy vonzó ($|f'_p(z_0)| < 1$), esetleg szupervonzó



1. ábra. A p paramétertér origó körüli részének a szerkezete a p paraméterrel jellemzett f_p leképezés vonzó fixpontjainak száma szerint. Sárga szín jelöli azokat a paramétereket, amelyek esetén a leképezésnek két vonzó fixpontja van és lila azokat, amelyek esetén a leképezésnek nincs vonzó fixpontja. Az ábra elkészítéséhez 2500×2500 -as felosztást használtunk.

($|f'_p(z_0)| = 0$). Egy iterált racionális komplex polinomfüggvényekre vonatkozó tétel szerint maximum 4 vonzó fixpontot vagy fix ciklust találhatunk.

Megvizsgáltuk, hogy a p paraméter különböző értékeihez tartozó, (1) egyenletben megadott f_p leképezéseknek hány vonzó fixpontja van. Ehhez numerikus szimulációt végeztünk, amelynek során kijelöltünk egy véges tartományt a paramétertérből, ennek vettük egy alkalmas felosztását, az egyes p értékek esetén megkerestük a fixpontokat, majd kiértékeltek a függvény deriváltját az adott fixpontokban. Az így kapott eredményeket az 1. ábra mutatja. A paramétertér tükrörszimmetriát mutat mind a valós mind a képzetes tengelyre. A két vonzó fixponttal rendelkező leképezéseknek megfelelő tartományt körülöleli az, amely esetén a fixpontok közül egy sem vonzó (utóbbi térrészben természetesen létezhetnek hosszabb vonzó ciklusok). Megjegyezzük, hogy minden p -re vagy 0 vagy 2 fixpontot találtunk.

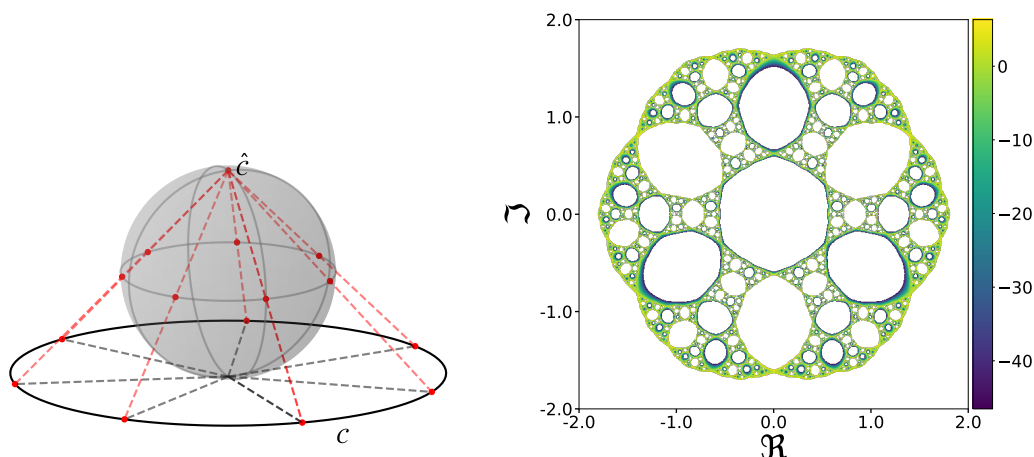
Egy adott p paraméterrel jellemzett $f_p(z)$ függvény iterálása nyomán a z állapottéren két (egymást kiegészítő) halmazt különböztethetünk meg. Az ún. Fatou-halmaz azon pontokat tartalmazza, melyek közül a kezdetben egymáshoz közeliek több iteráció után is közel maradnak és konvergálnak a leképezés valamely vonzó ciklusához. Ezzel szemben az ún. Julia-halmaz elemei olyan pontok, melyek nem tartanak egyik vonzó ciklushoz sem, és a kezdőállapot tetszőlegesen kicsiny perturbációja is drasztikusan különböző állapotra vezethet az iterációs lépések során. A Julia-halmaz tehát az instabil pontokat tartalmazza, melyek kaotikusan viselkednek. A kaotikus viselkedést jellemezhetjük az ún. Ljapunov-exponenssel, amely a kezdetben közeli fázistérbeli pontok egymástól való exponenciális eltávolodását írja le. Ha az értéke pozitív, az a rendszerbeli valódi kaotikus viselkedés megjelenését jelenti.

A z pontbeli Ljapunov-exponenst a következő kifejezéssel definiálhatjuk [7]:

$$\begin{aligned}
 L(z) &= \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{n} \ln (|f'(z)|_R \cdot |f'(f(z))|_R \cdot |f'(f^{\circ 2}(z))|_R \cdots |f'(f^{\circ n-1}(z))|_R) \\
 &= \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{n} \ln \left(\prod_{k=0}^{n-1} |f'(f^{\circ k}(z))| \right). \quad (2)
 \end{aligned}$$

Itt $f^{on}(z)$ az $f(z)$ függvény n -edik iteráltját, $|\cdot|_R$ pedig a Riemann-gömbön mért távolságot jelöli a Riemann-gömb déli pólusától, mely adott z -re $|z|_R = 2|z|/\sqrt{|z|^2 + 1}$.

A Julia-halmazon megjelenő káoszt és a pozitív Ljapunov-exponens megjelenését úgy vizsgáltuk, hogy az adott p paraméterrel jellemzett $f_p(z)$ leképezést numerikusan iterálva közelítettük a (2) egyenletet. Az eredményt a $p = i$ paraméternek megfelelő esetben a 2. ábra mutatja, melyen megfigyelhető, hogy az exponens egy fraktál alakzat mentén vesz fel pozitív értéket, ez a halmaz a leképezés Julia-halmaza. Ellenőrizhető, hogy azokban a tartományokban, ahol a Ljapunov-exponens negatív, a kezdőállapotok két 2-hosszú stabil vonzó ciklushoz tartanak (Fatou-halmaz).



2. ábra. (Bal oldal) A \mathbb{C} és $\hat{\mathbb{C}}$ közötti megfeleltetés a komplex számgömb és az azt egy pontban érintő komplex számsík közötti *sztereografikus leképezéssel* adható meg. A sztereografikus leképezés során a gömb síkkal való érintkezési pontjával átellenes pontjából induló félegyenesek által a síkból kimetszett $z \in \mathbb{C}$ pontot és a gömbből kimetszett $z' \in \hat{\mathbb{C}}$ megfeleltetjük egymásnak. Ekkor a 0 és a ∞ pontok rendre az érintkezési pontnak és az azzal átellenes pontnak felelnek meg. (Jobb oldal) A $p = i$ paraméterhez tartozó leképezés fázistere a numerikusan közelített Ljapunov-exponens értéke szerint kiszínezve. A vonzó ciklusok vonzási tartományai nincsenek kiszínezve.

Összefoglalva, az iterált harmadfokú nemlineáris protokoll bemutatott tulajdonságai alapvetően hasonlítanak a másodfokú esethez (ott a $p = 1$ paraméterértéket véve), azonban a 2. ábrán bemutatott fraktál szimmetriája megváltozott: négyfogásos helyett hatfogásossá vált. A teljes p paraméterter feltérképezésével várhatóan még jobban megérthetjük majd a harmadfokú dinamika sajátosságait és a másodfokútól eltérő tulajdonságait. Ez kulcsfontosságú lehet a protokoll alkalmazása szempontjából.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást az Innovációs és Technológiai Minisztérium és a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal támogatta a Kvantuminformatika Nemzeti Laboratórium, a K124351 sz. és a 2017-1.2.1-NKP-2017-00001 sz. projekt keretében.

Irodalom

- [1] T. Kiss, I. Jex, G. Alber and S. Vymětal, Phys. Rev. A **74**, 040301(R) (2006).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.74.040301>
- [2] A. Gilyén, T. Kiss and I. Jex, Sci. Rep. **6**, 20076 (2016).
<https://doi.org/10.1038/srep20076>

- [3] T. Kiss, S. Vymětal, L. D. Tóth, A. Gábris, I. Jex and G. Alber, Phys. Rev. Lett. **107**, 100501 (2011).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.100501>
- [4] J. M. Torres, J. Z. Bernád, G. Alber, O. Kálmán and T. Kiss, Phys. Rev. A **95**, 023828 (2017).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.023828>
- [5] O. Kálmán and T. Kiss, Phys. Rev. A **97**, 032125 (2018).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.032125>
- [6] G. Zhu O. Kálmán, K. Wang, L. Xiao, D. Qu, X. Zhan, Z. Bian, T. Kiss, and P. Xue, Phys. Rev. A **100**, 052307 (2019).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.052307>
- [7] A. Gilyén, Egy qubites káosz és kapcsolata a komplex dinamikus rendszerekhez (TDK dolgozat, 2013).

Összefonódott fotonpár források fejlesztése

Sarkadi Tamás¹, Holló Csaba¹, Erdei Gábor¹, Barócsi Attila¹, Galambos Máté¹, Koppa Pál¹

¹ Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Atomfizika Tanszék, 1111 Budapest, Budafoki út 8.

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.29>

1. Bevezetés

A kvantumoptika a fotonika gyorsan növekvő ága, amely a kvantumszámítások, a telekommunikáció, valamint titkosító kulcsok megosztására alkalmas eszközök és módszerek megvalósítását célozza. [1] A kvantumoptikai távközlő rendszerek egyik legfontosabb eleme a fényforrás, amely összefonódott fotonpárokat bocsát ki. [2] Az alkalmazott fotonpárok leggyakrabban energia-idő összefonódással, vagy polarizációban megvalósuló összefonódással rendelkeznek. Munkánk célja, hogy polarizációban összefonódott, 810 nm hullámhosszú fotonpárokat előállító forrásokat fejlesszünk, melyek szabadtéri kvantumoptikai távközlő és kulcsmegosztó rendszerekben hatékonyan alkalmazhatóak. Célunk, hogy robosztus, hordozható, és az alkalmazás számára elegendő fotonfluxust előállító forrást hozzunk létre.

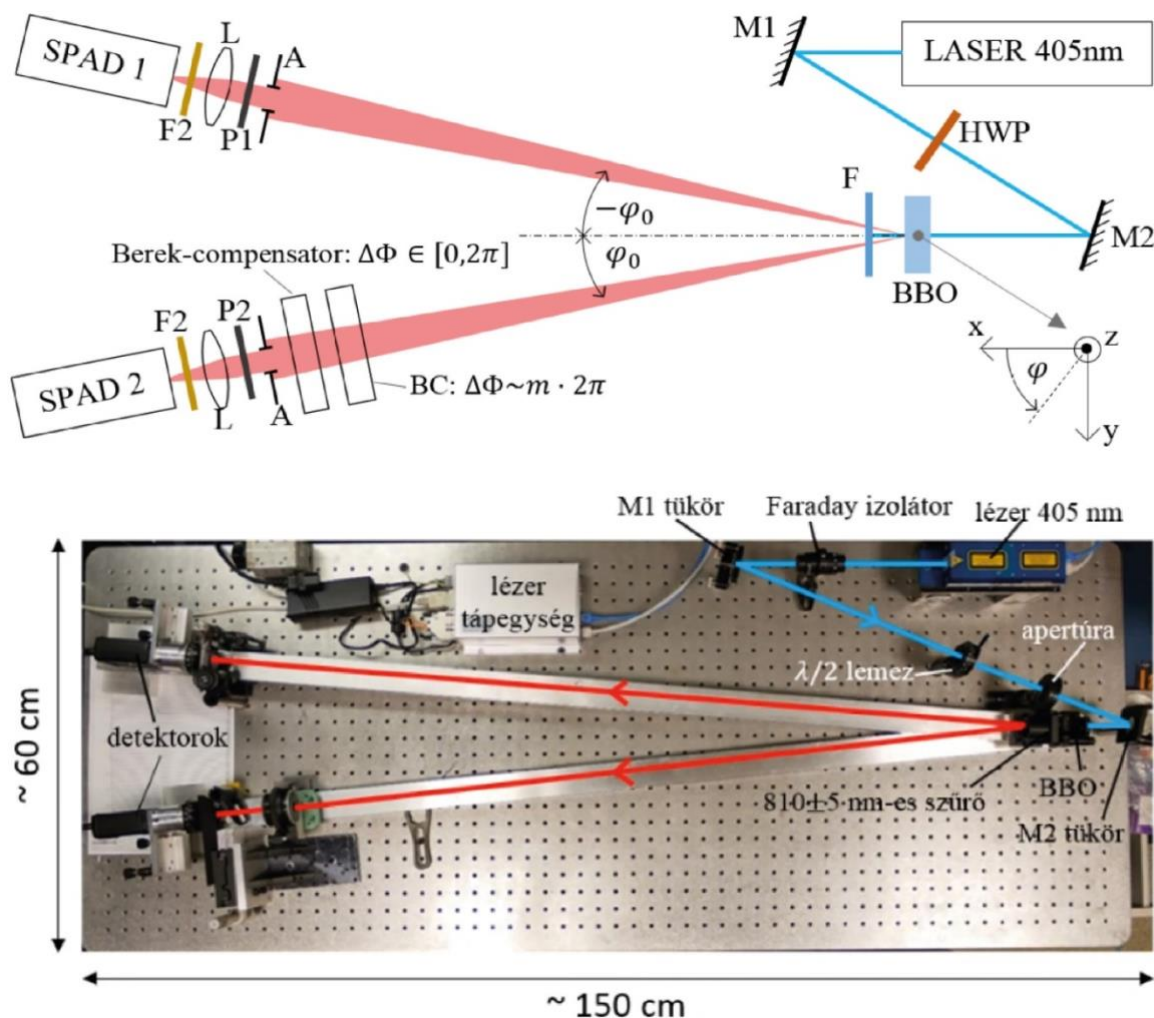
Az összefonódott fotonpárok előállítására leggyakrabban a spontán parametrikus lekonverzió (SPDC) jelenségét használják fel, mely nemlineáris optikai kristályokban zajlik le. A pumpálásra használt fény fotonja alakul át egy fotonpárrá, melynek összenergiája a pumpafoton energiájával egyezik meg. A kristály anyaga leggyakrabban béta bárium borát (BBO), vagy periodikusan polarizált kálium titánil foszfát (ppKTP) [3] Ez utóbbi használatkor a kristály hőmérsékletét stabilizálni kell. Ennek elkerülése érdekében a jelenlegi munkánk során BBO kristályt használtunk. A BBO kristályok két típusával foglalkoztunk. Az I. típusú BBO kristályt extraordinárius polarizációjú pumpafénnyel kell gerjeszteni, a lekonvertált fotonok ordinárusak, és jellemzően egy kúppalást mentén detektálhatóak nagy valószínűséggel. A II. típusú kristályból kilépő lekonvertált fotonpárok egyike ordinárus, másika extraordinárius polarizációjú. A kristályt elhagyó fotonok két egymást metsző kúppalást mentén terjednek. A kúpok két közös alkotójában a detektálható fotonok polarizációban összefonódottak és Bell-állapotban vannak [4], ami jól használható titkosító kulcsok megosztására.

Jelen cikkünkben bemutatjuk, milyen körülmények között használható a II. típusú BBO kristály Bell-állapotú, polarizációban összefonódott fotonok előállítására. Bemutatjuk fáziskompenzáló módszerünket, mellyel az összefonódottság bázisfüggetlen láthatósága javítható. Bemutatjuk a fáziskompenzált fényforráson elvégzett Bell-teszt eredményeit. Beszámolunk továbbá egy I. típusú kristállyal működő kompakt fotonpár forrás fejlesztésében elért eredményeinkről is.

2. Fáziskompenzáció alkalmazása összefonódott fotonpár forrásban

Felépítettünk egy II. típusú BBO kristályon alapuló, polarizációban összefonódott fotonokat előállító fényforrást. (1.ábra) A rendszer folytonos üzemű, egymódusú (módusstabilizált) pumpalézerrel rendelkezik, melynek közép-hullámhossza 405 nm. A HWP $\lambda/2$ lemez elforgatásával beállítható a beeső pumpa polarizációja az SPDC folyamatot megvalósító nemlineáris kristályon (BBO). Az F sávszűrő (810 nm közép-hullámhossz, 10 nm

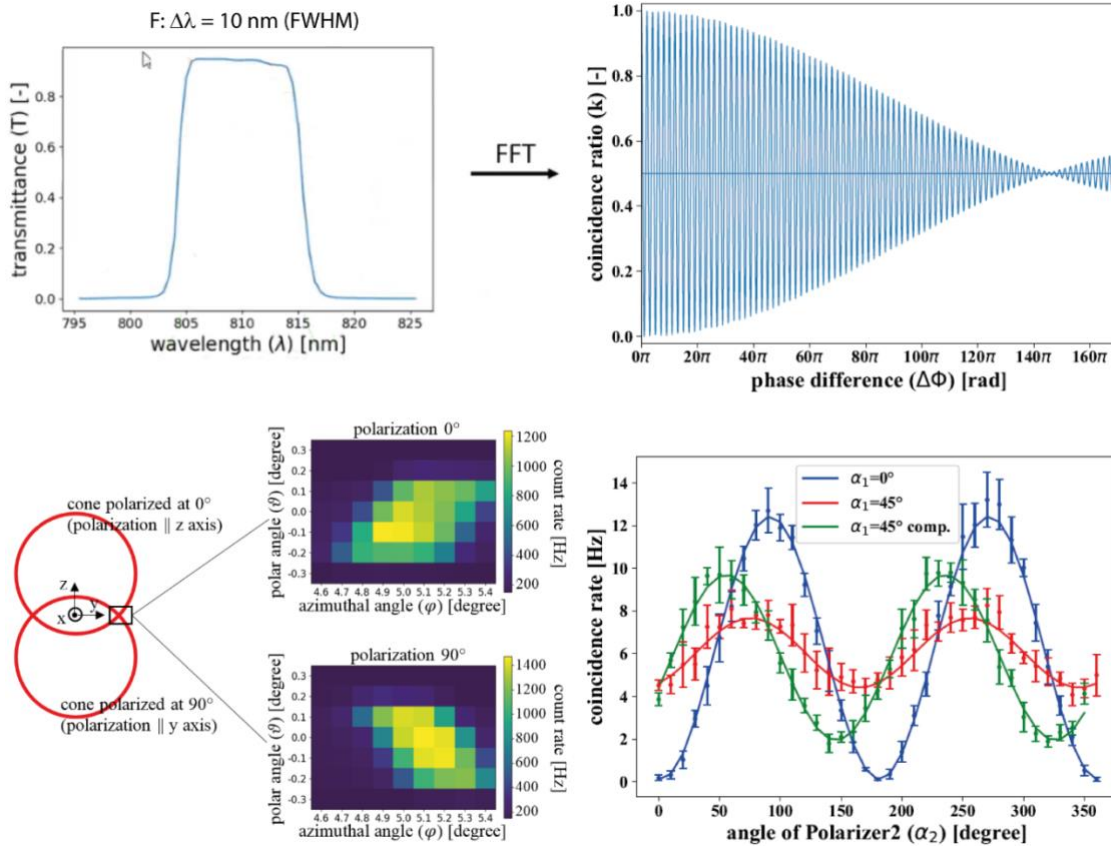
sávszélesség) a pumpanyaláb elnyomására szolgál. Az általunk vizsgált összefonódott állapotok iránya $\pm 5^\circ$. Mindkét karon az A apertúra $0,1^\circ \times 0,1^\circ$ polár- és azimut-szögeknek felel meg és meghatározza a beállítás szögfelbontását. Az állapotok elemzéséhez az egyes karokba helyezett P1 és P2 lineáris polarizátorokat használtuk, a z-tengelytől mért szögekkel. Az L lencsék az F2 647 nm-es hosszuhullámú élszűrőkön át fókuszálják az SPDC fényt az egyfoton-detektorokra (SPAD). A fáziskompensátor elemek (BC kettőstörő kristály és Berek-kompensátor) a fotonállapotok közötti fáziskülönbség durva és finomhangolására szolgálnak. A detektorjeleket koincidencia számláló áramkör segítségével dolgozzuk fel.



1. ábra. BBO kristállyal megvalósított fotonpár forrás kísérleti elrendezése.

A kísérletben az SPDC jelenség összefonódott és szorzat állapotok keverékét eredményezi. Még ha az összefonódott állapotok valószínűsége nagyon magas is, nem feltétlenül képezik a kívánt Bell-állapotot. A kettőstörő SPDC anyagok fáziskülönbséget mutatnak a HV és VH polarizációs állapotok között (H: vízszintes, V: függőleges). Ha a kristályból kilépő ordinárius és extraordinárius hullámkomponensek fáziskülönbsége nagyobb, mint a keletkezett fény koherencia hossza, akkor a fotonállapotok nem interferálnak. Ennek nincs hatása 0° és 90° bázisválasztás esetén, de az összefonódott párok közötti korreláció csökkenését eredményezi 45° bázis esetén. Ideális esetben a 45° bázis és a $(0^\circ; 90^\circ)$ bázis koincidencia-arányát a fotonpárok spektrális sűrűség-eloszlásának Fourier-transzformációjával a Wiener-Khinchin tétel alapján számolhatjuk [5] (2. ábra jobbra fent). A spektrális sűrűség-eloszlás pedig a BBO

utáni F sávszűrő (1. ábra fent) átvitele határozza meg, amelyet megmértünk és numerikusan transzformáltunk (2. ábra balra fent).



2. ábra. II-típusú BBO-val előállított összefonódott állapotok vizsgálata. Felső sor: a goniométeres elrendezés BBO utáni F sávszűrőjének spektrális átvitele (balra fent) és Fourier-transzformáltja a fotonpárok koincidencia-arányainak becsléséhez (jobbra fent) a fáziskülönbség függvényében (45° -os polarizátor-beállítások esetén). Balra lent: II-típusú BBO SPDC fotonpárjainak kilépő kúpjai és azok apertúrával mintavételezett átfedési tartományában kapott beütésszámok. Jobbra lent: koincidecia-beütésszámok a 2. polarizátor szögének függvényében. A folytonos vonalak az illesztett koszinusz függvények: a kék / piros görbék esetén a fotonpárokat kompenzálás nélkül mértük, míg a zöld görbét a fotonállapotok között elérhető legjobb fáziseltolás beállításával.

A fázistolást kompenzálhatjuk úgy, hogy kettőstörő elemeket (BC és Berek-kompenzátor) helyezünk az egyik karba (1. ábra fent). BC-ként egy másik, az SPDC BBO-val azonos kettőstörést adó BBO-t alkalmaztunk. A szükséges késleltetés beállításához a BC optikai tengelyét a 2. kar tengelyéhez képest megdöntöttük. A finomhangolást a Berek-kompenzátorral végeztük úgy, hogy maximális koincidencia-beütésszámot kapjunk 45° bázis esetén is (2. ábra jobbra lent). A nem kompenzált $0,27 \pm 0,013$ és a kompenzált $0,67 \pm 0,025$ láthatósági értékek sem érik el az 1 elméleti korlátot (a 0° bázist is ábrázoltuk referenciaként), de a megfigyelt növekedés meggyőző. A gyenge láthatóság magyarázata lehet, hogy a fázisszög még mindig nem optimális, illetve több paraméter (pl. apertúra-méret) még nincs optimalizálva. Ugyanakkor láthatóan a polarizációban összefonódott fotonpárok korrelációjának növelésére a fázistolás kompenzálás hatékony módszer és segíthet növelni ezen fotonok hasznos spektrális tartományát nagyobb koincidencia-beütésszámot eredményezve.

3. A fotonforrás Bell-tesztje

A mérés célja, hogy vizsgáljuk az előző fejezetben bemutatott ikerfoton-forrás két, térben elválasztott ágában kilépő fotonpár polarizációs állapotának erős kvantum-összefonódását, ezzel is minősítve a forrás kvantumviselkedését. A Bell-féle „rejtett változós elmélet” és az ennek megfelelő matematikai egyenlőtlenséget a Clauser, Horne, Shimony és Holt által bevezetett „S” paraméterrel [6] és annak hibájával minősítettük és hasonlítottuk össze annak kvantumelméleti értékével.

A rendszer hangolása után a detektorok elé helyezett polarizátorok négy beállítása mellett történtek mérések. Az egyes α és β polarizátorbeállítások mellett mért koincidenencia beütésszámokat a $P_{HV}(\alpha, \beta)$, $P_{VH}(\alpha, \beta)$, $P_{HH}(\alpha, \beta)$, és $P_{VV}(\alpha, \beta)$ szimbólumok jelölik. Ha az adott mérés során a megfelelő detektor előtti polarizátor az argumentumban szereplő szögben állt, H indexszel, ha arra merőlegesen, V indexszel jelöltük [7] nyomán. Ezek segítségével definiáljuk a következő mérőszámokat:

$$E(\alpha, \beta) = P_{HV}(\alpha, \beta) + P_{VH}(\alpha, \beta) - P_{HH}(\alpha, \beta) - P_{VV}(\alpha, \beta)$$

$$S = E(a, b) - E(a, b') + E(a', b) + E(a', b')$$

ahol $\{a, a', b, b'\}$ négy különböző polarizációs beállítás. Az így bevezetett mennyiségek jelentősége abban áll, hogy bármely rejtett paraméteres elmélet szerint tetszőleges polarizátor beállításokra $|S| \leq 2$. Az első polarizátort $\alpha = \{22,5^\circ; 67,5^\circ; 112,5^\circ; 157,5^\circ\}$ állásban, míg a másodikat $\beta = \{0^\circ; 45^\circ; 90^\circ; 135^\circ\}$ állásba forgatva mértük a 10 másodperces időablakba eső koincidenenciákat. A kísérleti elrendezés begyűjtött adataival a Bell-tesztet nagyszámú mintára elvégezve a következő eredmény adódott:

$$|S| = 2,255 \pm 0,039;$$

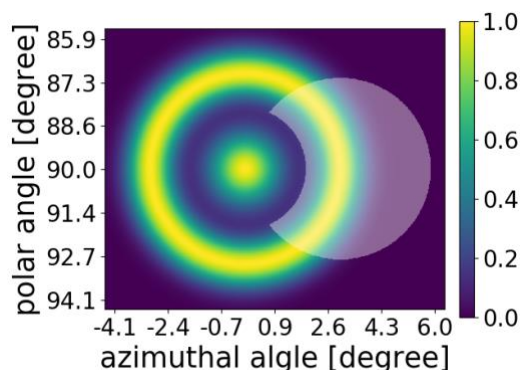
vagyis a Bell-egyenlőtlenség megsértését több mint $6\sigma_5$ bizonyossággal sikerült kimérni a felépített fotonforrásunk segítségével.

4. Kompakt fotonpár forrás fejlesztése

A fotonpár keltés kísérleti megvalósítása terén összegyűlt tapasztalataink alapján terveztünk egy I. típusú BBO kristályon alapuló fotonpár forrást, mely idő-energia alapú összefonódást valósít meg. A forrással szemben elvárásunk volt, hogy másodpercenként legalább 1400 darab 810 nm-es középhullámhosszú fotonpárt állítson elő úgy, hogy azok egymódusú optikai szálakba csatolva hagyják el a készüléket. Emellett az eszköz legyen hordozható kivitellű, továbbá költséghatékonyan felépíthető.

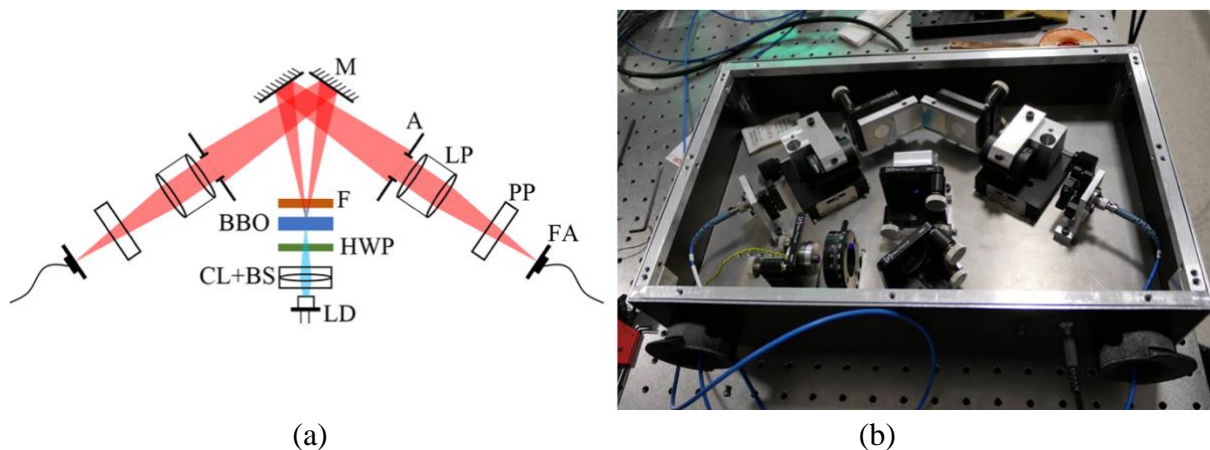
A tervezés során arra törekedtünk, hogy az SPDC folyamat során keletkező, kúppalást mentén terjedő fényhullám minél nagyobb hányadát minél nagyobb hatásfokkal lehessen az egymódusú szálakba csatolni úgy, hogy a pumpanyaláb fotonjai minél kisebb valószínűséggel jussanak be a szálakba. A becsatolási hatásfok növelése érdekében a kristály pumpált tartománya és a szálvégek között optikai leképezést valósítottunk meg. A leképezés nagyításának, a lencserendszer pupillaátmérőjének optimalizálását, valamint a várható aberrációk minimalizálását ZEMAX optikai tervezőprogram segítségével végeztük. Az optimális leképezés nagyításának 1:2,1 érték adódott. A szálcsatoló optika belépő pupillájának és az SPDC folyamat során keletkező fény hullámfrontjának viszonyát a 3. ábra

szemlélteti. A tervezett konfiguráció mellett 24,7 % annak a valószínűsége, hogy az SPDC folyamat során keletkező fotonpár mindkét tagja szálba csatolódik.



3. ábra. A spontán parametrikus lekonverzió útján keletkező fény hullámfontjának távoltéri intenzitás-eloszlása (gyűrű alakú eloszlás), valamint a pumpahullám intenzitás eloszlása (Gauss-eloszlás a gyűrű közepén). A szálcsatoló rendszer optimális belépő pupillája (világos, Hold formájú körkép)

A tervezett készülék vázlatát a 4.a ábra mutatja, mely továbbfejlesztett változata az 1. ábrán látható elrendezésnek. Pumpafényforrásként (LD) egy 405 nm-es, egy transzverzális módussal rendelkező lézerdíódot alkalmaztunk, melyet stabilizált árammal hajtottunk meg. A dióda fényét nyalábformáló optikával (CL+BS) kollimáltuk, majd a nyalábot a kristály középpontjába fókuszáltuk. A pumpanyaláb megfelelő polarizációs állapotát félhullám lemezzel állítottuk elő. (HWP). A parametrikus lekonverzió 3 mm vastag I. típusú BBO kristályban valósul meg. A pumpanyalábot az F aluláteresztő szűrő segítségével nyomjuk el. Az M tükrök részben a fényutak összehajtását, részben a terjedési irányok beállítását szolgálják. A szálcsatoló lencserendszer (LP) két akromátból áll, és 1:2 arányú leképezést valósít meg. A lencsék előtt található (A) apertúra a 3. ábrán látható alakú. A szálrögzítő foglalatok (FA) előtt található PP planparallel lemezek két tengely mentén dönthetőek, segítségükkel a lencsék fókuszfoltja a szálvégekre igazítható.



4. ábra. A kompakt összefonódott fotonpár forrás vázlatos elrendezése (a). Az elkészült fotonpár forrás (b).

Az optikai elemeket 20 mm vastag alumínium lemezre építettük a mechanikai stabilitás érdekében, amit aztán fénymentesen és hermetikusan lezárható dobozba helyeztünk. Az elkészült berendezés a 4.b ábrán látható. Optimális beállítások mellett a szálkimeneteket

$5 \cdot 10^5$ koincidens fotonpár hagyja el 46 mW-os pumpalézer teljesítmény mellett, míg a heralding arány 21 %. A fotonpár forrás jelenlegi paraméterei alapján alkalmas arra, hogy szabadtéri kvantumoptikai távközlő rendszerben alkalmazzuk.

5. Összefoglalás

Munkánk során kísérletileg vizsgáltuk a béta bárium borát kristállyal megvalósított spontán parametrikus lekonverzió alapuló összefonódott fotonpár forrásokat. A kísérleti tapasztalatok alapján megterveztünk és megvalósítottunk egy szálcsatolt, energia-idő foton összefonódást létrehozó kompakt kivitelű fotonforrást. A közeljövőben a készüléket továbbfejlesztjük. A pumpanyaláb hullámhossz-stabilitása érdekében célszerűnek látjuk a pumpalézer hőmérsékletének stabilizálását, továbbá a forrást alkalmassá tesszük polarizációban összefonódott fotonok előállítására.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást a Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alap támogatta a Nemzeti Kiválósági Program keretében, a "Kvantumbitek előállítása, megosztása és kvantuminformációs hálózatok fejlesztése" című, 2017-1.2.1-NKP-2017-00001. számú projekt részeként.

Hivatkozások

- [1] M. Fox, Quantum Optics: An Introduction. Oxford U. Press, New York, 2006.
- [2] A.K. Ekert, „Quantum cryptography based on Bell's theorem”, *Physical Review Letters*. **67** (6) 661-663 (1991)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.67.661>
- [3] R. W. Boyd, Nonlinear Optics. Elsevier Science, 2008.
- [4] J. S. Bell, „On the einstein podolsky rosen paradox,” *Physics Physique Fizika*, vol. 1, pp. 195–200, nov 1964.
<https://doi.org/10.1103/PhysicsPhysiqueFizika.1.195>
- [5] E. Wolf, Introduction to the Theory of Coherence and Polarization of Light, Cambridge University Press, 2007.
- [6] J.F. Clauser, M.A. Horne, A. Shimony, R.A. Holt, "Proposed experiment to test local hidden-variable theories", *Phys. Rev. Lett.*, **23** (15): 880–4 (1969)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.23.880>
- [7] D. Dehlinger and M. W. Mitchell, „Entangled photons, nonlocality, and Bell inequalities in the undergraduate laboratory”, *Am. J. Phys.*, **70**, 903–910 (2002)
<https://doi.org/10.1119/1.1498860>

VIBRATIONAL RELAXATION DEMONSTRATED IN NICOTINAMIDE ADENINE DINUCLEOTIDE APPLYING MACHINE LEARNING BASED ANALYSIS

Áron Sipos¹, Rita Nagypál^{1,2}, Ferenc Sarlós¹, Géza I. Groma¹

¹Institute of Biophysics, Biological Research Centre Szeged

²Doctoral School of Physics, University of Szeged

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.30>

1. Introduction

Found in prokaryotic and eukaryotic cells, the metabolic cofactor nicotinamide adenine dinucleotide (NAD) plays an essential role in redox reactions, powering biochemical reactions as a major electron carrier [1–3]. Existing in its oxidized (NAD⁺) and reduced (NADH) forms, NAD is an important coenzyme and metabolic marker since any perturbation to the NADH/NAD⁺ ratio can be a good indicator of a diseased cell or disturbed cell cycle states [1, 4]. While the oxidized form of NAD is nonfluorescent, it has been demonstrated that NADH exhibits autofluorescence showing a fluorescence band with a peak at 460 nm [5]. Composed of adenosine monophosphate, dihydronicotinamide ribose 5'-phosphate, two 5'-nucleotides and a pyrophosphate bridge, the structure of the reduced form NADH has been widely observed [6]. Although NMR and theoretical studies suggested several possible conformations, based on the work of Meyer et al. two main groups can be noted: an unfolded/extended form in which the nicotinamide group lies apart from the adenine and a folded form, the two bases are stacking upon each other [7–10]. The conformational heterogeneity of NADH can be described as a rapid, dynamic equilibrium of folded and unfolded states, the former one being described as dominant in aqueous solutions [7]. Based on time-resolved studies, upon direct excitation of its nicotinamide group multicomponent decay dynamics of NADH has been revealed, and upon exciting the chromophore group, fluorescence decay is fit by two exponentials, with 0.4 and 2.0 ns lifetimes, attributed to the free and the bound forms, respectively [11, 12]. Regarding free NADH, in aqueous solution biexponential fluorescence decay is exhibited showing the lifetimes of 0.3 and 0.7 ns [6, 13, 14]. It is concluded that the lifetimes strongly depend on the solvent type and temperature [13–16]. Upon excitation at its adenine ring, studies suggested direct intramolecular energy transfer to the nicotinamide group with a high efficiency in aqueous solution and a diminished one in water-methanol solutions, attributed to denaturation [6, 8, 10].

In the present study we measure the fluorescence kinetics of NADH in an aqueous solution with high precision and apply a custom machine learning based analysis method to determine exactly the nature of the decay dynamics.

2. Methods

The fluorescence kinetics was measured by applying the combination of two different techniques (Figure 1). The 100 fs – 1 ns range was measured by fluorescence upconversion (UpConv), while the 100 ps – 10 ns range by time-correlated single photon counting (TCSPC). A laser oscillator (Mai Tai eHP, Spectra Physics) was used as the light source (central wavelength applied 750 nm, mean power 2.5 W, repetition rate 80 MHz, pulse length ~70 fs), the dispersion of the setup was compensated by a prism pair. The laser beam was split to pump and gate beams using a half-wave plate and a polarization beam splitter. The pump beam was frequency doubled using a BBO crystal. The second harmonic (SH) was separated from the pump using two dichroic mirrors, and short pass color filters, and after focusing with lens ($f = +50\text{mm}$) was used to excite the NADH. The polarization of the excitation was set using a half-wave plate. The fluorescence was collected after a wire grid polarization filter with a pair of off-axis parabolic mirrors (effective focal lengths 2" and 12"), and

focused through a longpass color filter onto a sum frequency generating BBO crystal. The gate beam was driven through a delay line containing a retroreflector mounted to a precision translator (UTS150CC, Newport) and focused onto the sum frequency generating BBO with a $f=+200$ mm lens. The angle between the fluorescence and the gate beam was 11° . The generated sum frequency was driven into an imaging spectrometer (iHR550, JobinYvon), and was detected using a CCD camera cooled by liquid nitrogen (Symphony, JobinYvon). The time resolution of the UpConv setup was measured using the Raman signal of distilled water and was found to be 165 fs.

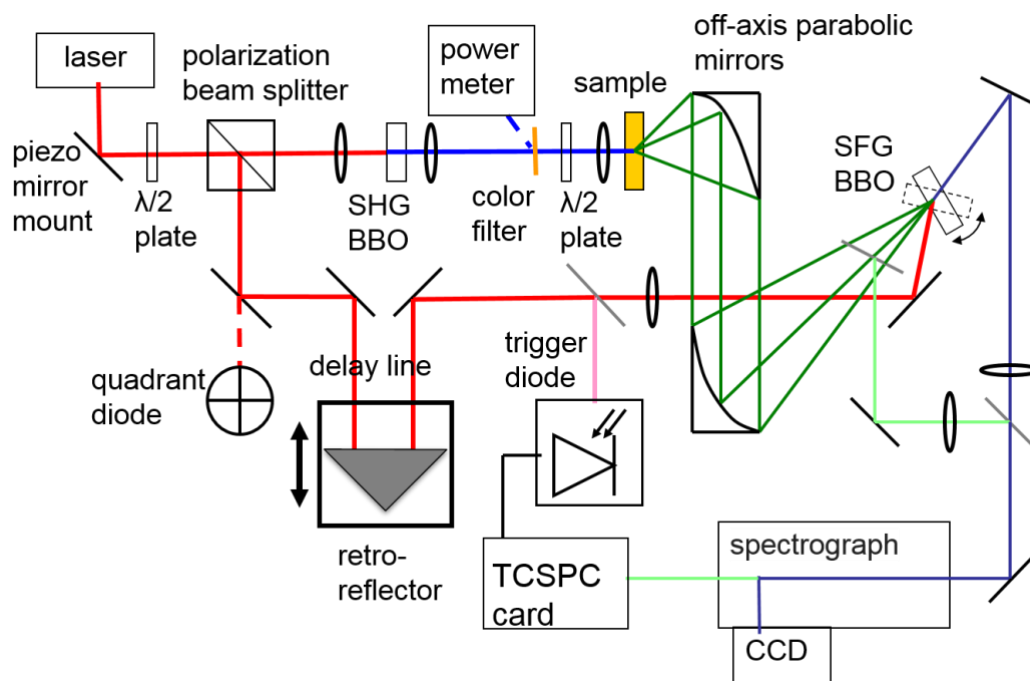


Figure 1. The layout of the experimental setup.

For the TCSPC measurement a Becker & Hickl SPC-130 module was used. The fluorescence was weakened using ND filters, was driven directly into the spectrograph and the signal of the selected wavelength was detected using an avalanche diode (ID-100-50-UNL, ID Quantique). The gate beam was focused onto a fast photodiode (DET10M, Thorlabs) providing trigger signal for the TCSPC measurement. The time resolution of the TCSPC setup was 45-50 ps.

In the course of the measurements the direction of the laser beam and the SH power were stabilized. The beam direction was measured using a quadrant diode (SpotOn, Duma Optronics) and stabilized using a piezo mirror mount (KC1-PZ, Thorlabs). The SH power was measured at the reflection on the color filter using a photodiode power meter (PD300, Ophir), and was stabilized by the rotation of the half-wave plate at the polarization beam splitter.

A 3 mM solution of NADH (Sigma-Aldrich, in the form of disodium salt hydrate) was prepared in 0.1M PIPES buffer (pH = 7.0) and 15 mM ascorbic acid was added to minimize the oxidation of that. The sample was circulated through a 1 mm quartz cuvette (Starna) by a peristaltic pump. The sample was cooled to 16 °C. The excitation power was 3mW and the spot size at the sample was $\sim 50\mu\text{m}$. The cooling and the addition of ascorbic acid prevented NADH from oxidation in an extent that during the ~ 15 hour of UpConv measurements the signal did not decrease significantly, and this decrease was corrected for. The fluorescence kinetics were detected at magic angle at seven wavelengths in the 450-570 nm wavelength range.

The kinetics obtained by the combination of the data detected in the UpConv and TCSPC measurements are presented in Figure 2.

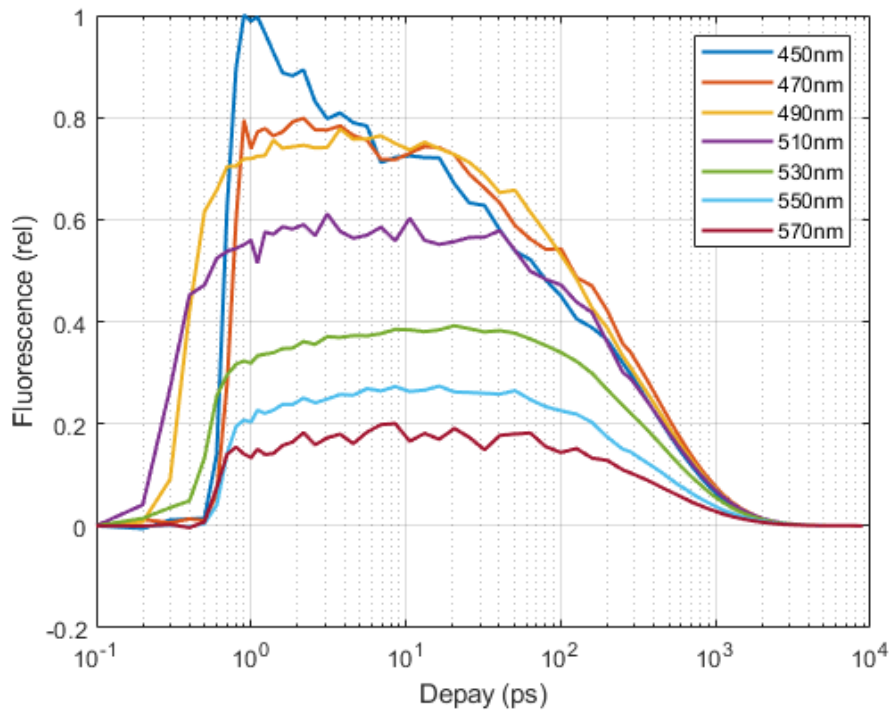


Figure 2. The fluorescence kinetics of NADH at different wavelengths.

3. Analysis of data

Kinetic datasets are challenging to analyze due that many reactions could take place simultaneously, and it is hard to distinguish them. A reason for this complexity is originated in the heterogeneity of the conformational states of a fluorescent molecule studied by time-resolved fluorescence [17, 18]. One could assume that the data could be approximated by first-order kinetics, but in many cases we do not have proper knowledge on whether this assumption is true or not. In our case, the data do not hold direct information on the time-dependent concentration of the different compounds created by the photoexcitation, what we have is a set of kinetics measured at different wavelengths. The straightforward method in this case is to fit the kinetics by a sum of exponential terms. Unfortunately this type of analysis is also problematic, for eg. the number of components is not known in advance and the experimental data may be taken relatively sparsely over a long period of time. It was shown earlier [19, 20], that a superior way for the analysis is the application of the LASSO (Least Absolute Selection and Shrinkage Operator) method defined as

$$\text{minimize} \left[\frac{1}{2} \|\mathbf{b} - \mathbf{A}\mathbf{x}\|_2^2 + \lambda \|\mathbf{x}\|_1 \right]. \quad (1)$$

Here \mathbf{b} is the vector of the experimental data with length of m , the element b_i of which is taken at the time t_i , \mathbf{A} is an $m \times n$ matrix – called the design matrix – with elements of

$$A_{ij} = \exp(-t_i / \tau_j), \quad (2)$$

where τ_j is an element of the vector $\boldsymbol{\tau}$ of length n , consisting of a series of pre-defined time constants, $\mathbf{x}(\boldsymbol{\tau})$ is the distribution to be determined and λ is a positive hyperparameter. This method ensures that solution $\mathbf{x}(\boldsymbol{\tau})$ will be sparse. Furthermore, because we can state that at the different wavelengths of the observations we have the same conformations and states of the NADH molecule – although it is clearly observable that the decays are different – we can suppose a strong correlation among them. This type of correlation can be achieved by an extension of the LASSO, called the group LASSO. Another extension, the elastic net, containing a second (L_2 type) penalty term with a ω

hyperparameter makes possible to control the width of the peaks in the solution. Utilizing the statistical methods of cross validation (CV) and Bayesian optimization (BO), we set up a machine learning algorithm to select the solutions automatically. The task of the algorithm is to find the (λ, ω) parameter pair based on the experimental data only.

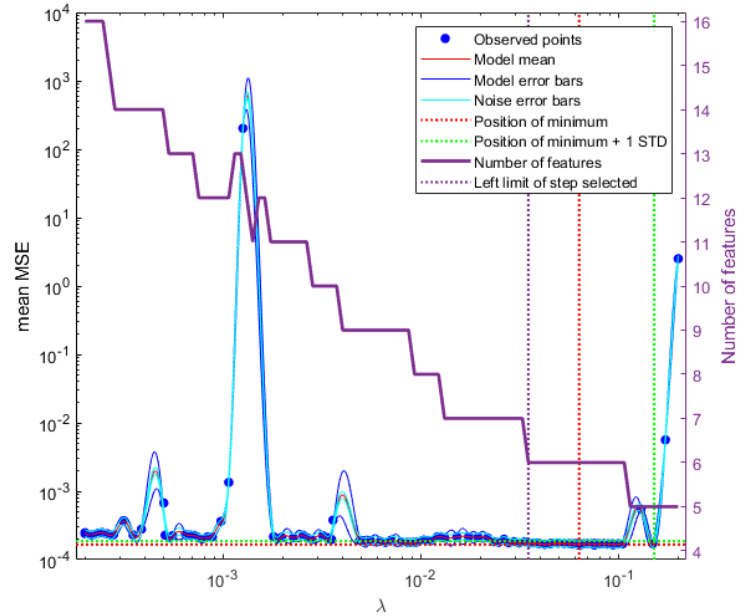


Figure 3. Selection of the value of λ by BO based on 10 000 CV iterations at a fixed value of ω .

The results are shown in Figure 3 for the parameter λ . The detailed explanation of the method will be given in an upcoming publication of ours, and the algorithm is planned to be made publicly available together with a user manual. For a given wavelength the results of the fit are presented in Figure 4.

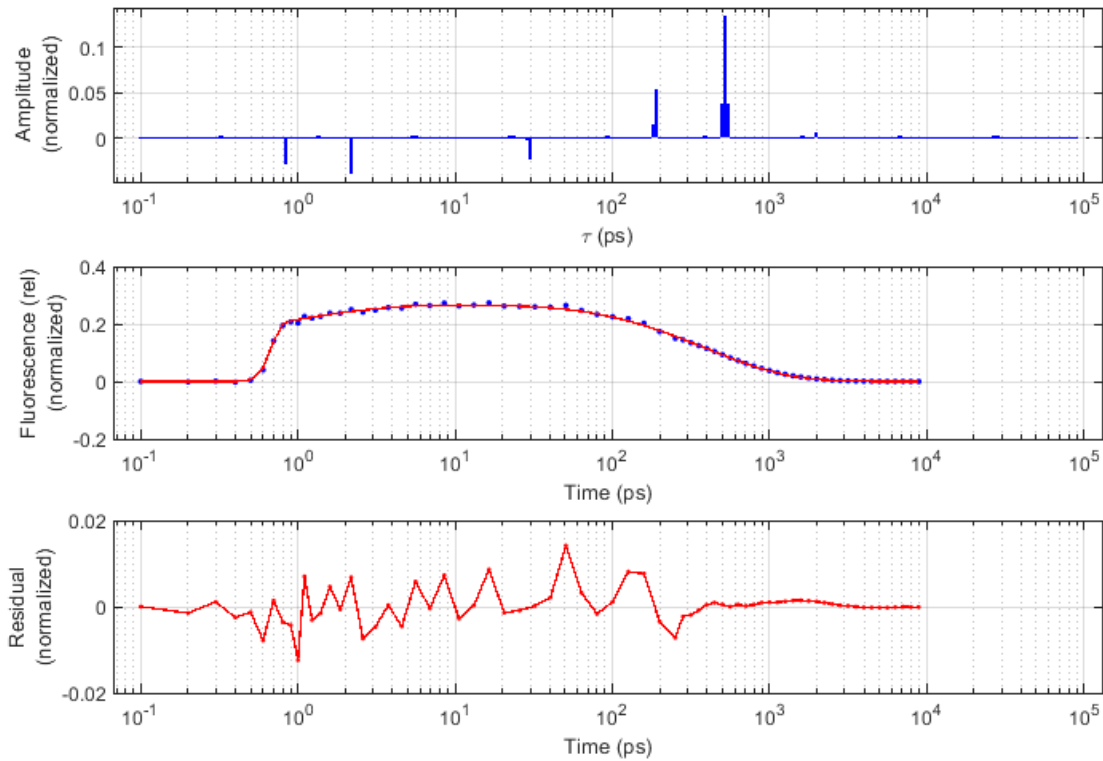


Figure 4. The distribution of time constants, the fit of data applying these time constants and the resulting error for observation at 510 nm.

As presented in Figure 5, the analysis resulted in several time constants observable in the fast (smaller than 100 ps) and in the slower (larger than 100 ps) range. The slower time constants ~ 200 and 500 ps are in accordance with the previous studies, the constant at 2000 ps is negligibly small. The change from positive to negative values of the fast components with the increase of the wavelength can be explained by a time-resolved Stokes shift, related to a complex ultrafast vibrational relaxation phenomenon within the molecule.

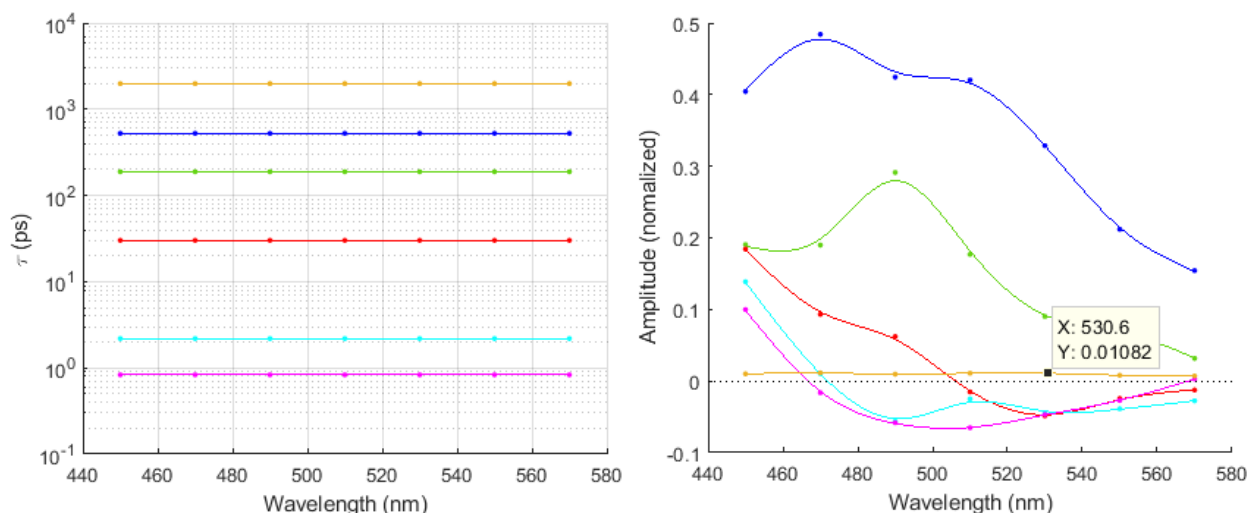


Figure 5. Time constraints (left) and their relative amplitude at different wavelengths (right).

4. Conclusions

We presented that if proper time resolution can be achieved in fluorescence kinetics measurement, and if modern statistical methods are applied to the analysis of the measured data, very fine details of the kinetics can be observed. In the case of NADH three ultrafast components obtained by such analysis can be associated with different vibrational relaxation processes of the molecule. The analysis method can be applied to any sufficiently detailed experimental data, opening a new way to study very fast dynamics in energy transfer related phenomena.

5. Acknowledgements

This work was supported by the National Research, Development and Innovation Office of Hungary under grants GINOP-2.3.2-15-2016-00001, 2018-1.2.1-NKP-2018-00009 and NKFIH PD-121170.

6. References

- [1] Eto, K., Tsubamoto, Y., Terauchi, Y., Sugiyama, T., Kishimoto, T., Takahashi, N., Yamauchi, N., Kubota, N., Murayama, S., Aizawa, T., et al. (1999) (Washington, DC, U. S.) **283** (5404), 981–985.
<http://doi.org/10.1126/science.283.5404.981>
- [2] Lehninger, A., Nelson, D. L., and Cox, M. M. (2008) *Lehninger Principles of Biochemistry*, W. H. Freeman.
- [3] Koch-Nolte, F., Haag, F., Guse, A. H., Lund, F., and Ziegler, M. (2009). *Sci. Signaling* **2**, mr1.
<https://doi.org/10.1126/scisignal.257mr1>
- [4] Santidrian, A. F., Matsuno-yagi, A., Ritland, M., Seo, B. B., Leboeuf, S. E., Gay, L. J., Yagi, T., and Felding-habermann, B. (2013) *J. Clin. Invest.* **123** (3), 1068–1081.
<https://doi.org/10.1172/JCI64264>

- [5] Chance, B.; Cohen, P.; Jobsis, F.; Schoener, B. *Science* 1962, **137**, 660.
<https://doi.org/10.1126/science.137.3531.660>
- [6] R. Hull, P. Conger III, R. Hoobler, *Biophys. Chem.* **90** (1) (2001) 9–16,
[https://doi.org/10.1016/S0301-4622\(00\)00239-8](https://doi.org/10.1016/S0301-4622(00)00239-8)
- [7] Meyer, W. L.; Mahler, H. R.; Baker, R. H. *Biochim. Biophys. Acta, Gen. Subj.* 1962, **64**, 353–358.
- [8] Cadena-Caicedo, A.; Gonzalez-Cano, B.; López-Arteaga, R.; Esturau-Escofet, N.; Peon, J. J. *Phys. Chem. B* 2020, **124**, 519–530.
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.9b10012>
- [9] Freed, S.; Neyfakh, E. A.; Tumerman, L. A. *Biochim. Biophys. Acta* 1967, **143**, 432–434.
- [10] Heiner, Z.; Roland, T.; Leonard, J.; Haacke, S.; Groma, G. I. *J. Phys. Chem. B* 2017, **121**, 8037–8045.
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.7b04753>
- [11] König, K.; Berns, M. W.; Tromberg, B. J. J. *Photochem. Photobiol., B* 1997, **37**, 91–95.
[https://doi.org/10.1016/S1011-1344\(96\)07327-7](https://doi.org/10.1016/S1011-1344(96)07327-7)
- [12] Vishwasrao, H. D.; Heikal, A. A.; Kasischke, K. A.; Webb, W. W. J. *Biol. Chem.* 2005, **280**, 25119–25126.
<https://doi.org/10.1074/jbc.M502475200>
- [13] Visser, A. J. W. G.; Hoek, A. v.. *Photochem. Photobiol.* 1981, **33**, 35–40.
<https://doi.org/10.1111/j.1751-1097.1981.tb04293.x>
- [14] Couprie, M. E.; Mérola, F.; Tauc, P.; Garzella, D.; Delboulbé, A.; Hara, T.; Billardon, M. *Rev. Sci. Instrum.* 1994, **65**, 1485–1495.
<https://doi.org/10.1063/1.1144880>
- [15] Ladokhin, A. S.; Brand, L. J. *Fluoresc.* 1995, **5**, 99–106.
<https://doi.org/10.1007/BF00718787>
- [16] Blacker, T. S.; Marsh, R. J.; Duchon, M. R.; Bain, A. J. *Chem. Phys.* 2013, **422**, 184–194.
<https://doi.org/10.1016/j.chemphys.2013.02.019>
- [17] Pal, S. K.; Peon, J.; Zewail, A. H., *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2002, **99**, 1763–1768.
<https://doi.org/10.1073/pnas.042697899>
- [18] Ruhman, S.; Hou, B.; Friedman, N.; Ottolenghi, M.; Sheves, M. J. *Am. Chem. Soc.* 2002, **124**, 8854–8858.
<https://doi.org/10.1021/ja026426q>
- [19] Groma, G. I.; Heiner, Z.; Makai, A.; Sarlos, F., *RSC Advances* 2012, **2**, 11481–11490.
<https://doi.org/10.1039/C2RA21773B>
- [20] Chen, S. S. B.; Donoho, D. L.; Saunders, M. A., *SIAM Journal on Scientific Computing* 1998, **20**, 33–61.
<https://doi.org/10.1137/S1064827596304010>

TÖBBFOTONOS REZONANCIA-FOKOZOTT IONIZÁCIÓBAN KILÉPŐ ELEKTRONOK DINAMIKUS INTERFERENCIÁJA

Szabó Krisztián¹, Csehi András¹

¹Debreceni Egyetem, Elméleti Fizikai Tanszék, 4026 Debrecen Bem tér 18, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.31>

1. Bevezetés

Alapállapotú atomok és molekulák lézerrel történő ionizációja során kilépő elektronok kinetikus energiáját (amennyiben a $\hbar\omega$ foton energia nagyobb mint az I_p ionizációs potenciál) az $E = n \cdot \hbar\omega - I_p$ Einstein-féle összefüggés adja meg. A rendszer által elnyelt fotonok számának (n) növekedtével ún. ATI (above threshold ionization = küszöb feletti ionizáció) csúcsok sorozatát figyelhetjük meg a kiváltott elektronok energia spektrumában. Az első ATI csúcs nominális pozíciója a spektrumban $\hbar\omega - I_p$, míg a magasabb rendű csúcsoké ehhez képest egy-egy foton energiával eltolva figyelhető meg. A csúcsok magassága erősen csökken az elnyelt fotonok számának növekedtével tükrözvén azt, hogy a magasabb rendű ionizációs folyamatok jelentősen kisebb valószínűséggel következnek be.

Az eddig elmondottak gyenge terek esetén érvényesek. Intenzív lézerek alkalmazásával egyrészt jelentősen megnő a többfotonos folyamatok valószínűsége, másrészt a kötött és kontinuum energia szintek Stark-eltolódása miatt a fenti Einstein-féle összefüggés módosul, ami az ATI csúcsok pozíciójának megváltozását eredményezi.

A közelmúltban több kutatócsoport tagjai is rámutattak arra, hogy erős lézertérbe helyezett atomok és molekulák fotoelektron spektrumában egy küszöb lézer intenzitás felett az intenzitás növelésével a spektrumbeli csúcsok újfajta, egyre gazdagodó struktúrát mutatnak [1-6]. Az egyszerű fotocsúcsokon megjelenő interferencia mintázatért az alkalmazott lézerpulsus felszálló és leszálló ágában ionizált elektronok interferenciája a felelős [2]. Erős lézerpulsusok esetén (amennyiben azok többciklusúak) a rendszer energia szintjei és ezáltal az emittált elektronok energiái is időtől függő Stark-eltolódást szenvednek, melyek időlefolyását a pulzus intenzitás burkolója, nagyságát pedig a lézer intenzitása határozza meg. Erős terek esetén tehát az ionizáció folyamatában az elektronok energiája időben a pulzus intenzitás burkolója szerint változik, ezáltal pedig a pulzus felszálló és leszálló felében kibocsájtott elektronok pontosan azonos energiákkal rendelkeznek. Az azonos energiájú elektronok különböző időben emittálódnak ami a megfigyelt energia spektrumban interferencia megjelenéséhez vezet (innen a *dinamikus interferencia* elnevezés [2]).

A dinamikus interferenciát a keletkezés mechanizmusa szerint két alapvető csoportra oszthatjuk: i) direkt egyfotonos ionizációban ($\hbar\omega > I_p$) létrejövő [1-4], valamint ii) köztes rezonáns állapotokon keresztül végbemenő ($\hbar\omega < I_p$) ionizáció során keletkező dinamikus interferenciát [5-6] különböztethetünk meg. Az utóbbi esetben legalább két foton szükséges a rendszer ionizációjához. Az első foton a rendszer két kötött állapota között Rabi-oszcillációt indukál, a második foton pedig az éppen gerjesztett állapotban lévő elektronokat ionizálja. Az így módon kilépő elektronok mikroszkópikus szondaként fontos információval szolgálnak az adott Rabi-átmenetről [5].

Jelen munkában ultragyors intenzív lézerpulsus segítségével egy atomi rendszer többfotonos ionizációját tanulmányozzuk. A rendszer két kötött állapota között két foton segítségével Rabi-oszcillációt indukálunk, amit aztán egy harmadik ionizáló fotonnal szondázunk. Ezen 2+1 fotonos ún. REMPI (resonance-enhanced multiphoton ionization = rezonancia-fokozott többfotonos

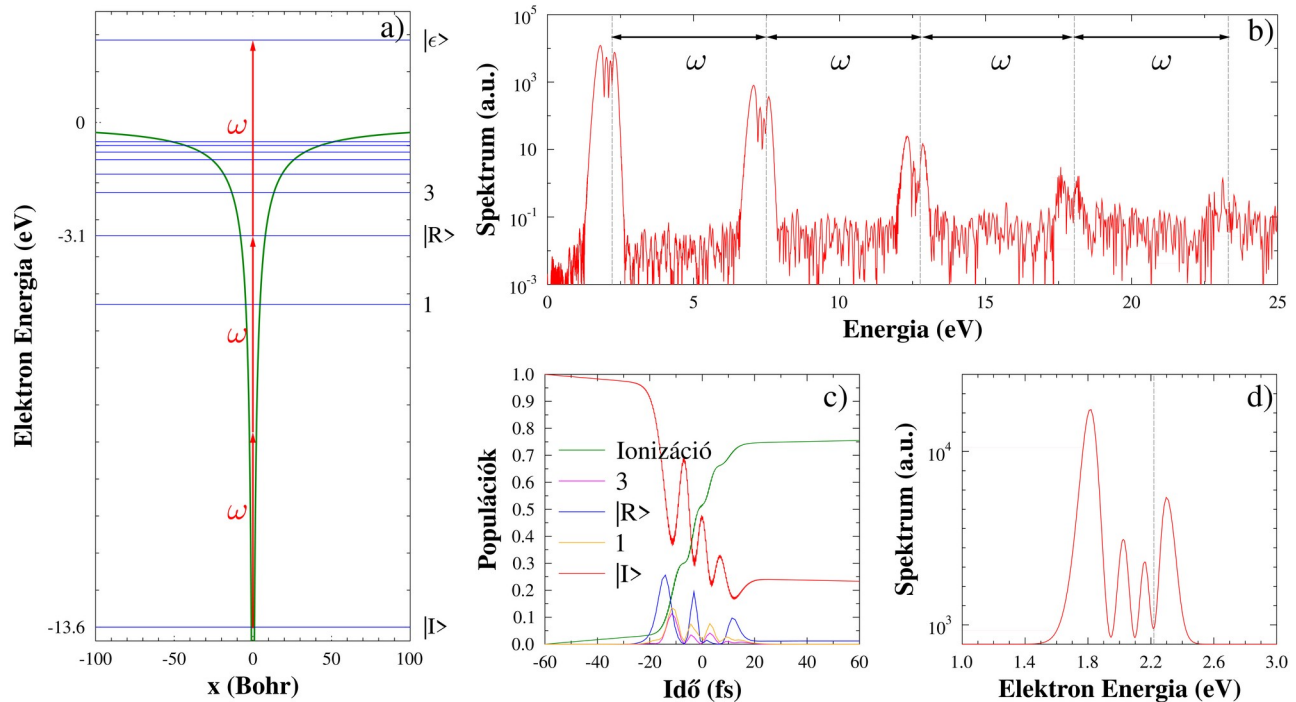
ionizáció) folyamatban a kétfotonos gerjesztés révén olyan átmeneteket tanulmányozhatunk melyek dipólrendben (egy fotonnal) tiltottak. Többfotonos átmenetekben az állapotok jelentős Stark-eltolódást szenvednek (ellenben a dipól átmenetekkel, ahol ez elhanyagolható [5]) aminek fontos következményi vannak az emittált elektronok energia eloszlásában. Be fogjuk látni, hogy a 2+1 fotonos REMPI folyamatban megfigyelt fotoelektron spektrum erős dinamikus interferencia mintázatot mutat, melynek alakját alapvetően meghatározza a rezonánsan csatolt kötött állapotok Stark-eltolódása. Rávilágítunk arra, hogy az 1+1 REMPI folyamattal szemben [5] a kétfoton átmenetet követő ionizációban a spektrum erős aszimmetriát mutat a felhasadás és eltolódás mellett. Kvalitatív analízisünkben a numerikusan egzakt hullámfüggvény propagálási eredményeinket egy három állapotú modellel összevetve megmutatjuk, hogy a Stark-eltolódások valamint a kétfoton Rabi-frekvencia pontosan hogyan határozza meg a spektrum jellemzőit.

2. Eredmények

Numerikus vizsgálatunk eredményeit egy, az erős terű fizikában gyakran alkalmazott egydimenziós Coulomb modell atom [7] példáján szemléltetjük. Az atom-lézer kölcsönhatás leírásához az $i\hbar d\psi/dt = [\hat{H}_0 + \hat{V}(t)]\psi$ időtől függő Schrödinger-egyenletet oldjuk meg az operátorok szétválasztásán alapuló ún. SOT (split operator technique) módszer segítségével [8]. \hat{H}_0 a perturbálatlan atom Hamilton-operátora, $\hat{V}(t) = -\vec{E}(t) \cdot \vec{\mu}$ pedig a lézer-atom kölcsönhatási tag dipól közelítésben. $E(t) = E_0 \cdot e^{-t^2/2\tau^2} \cdot \cos(\omega t)$ alakú x irányban lineárisan poláros Gauss lézerpulzusokat alkalmazunk a vizsgált 2+1 fotonos rezonancia-fokozott többfotonos ionizáció kiváltásához, melyek tipikus pulzushossza $\tau = 20$ fs, intenzitása pedig az $I_0 = 10^{12} \text{ W/cm}^2 - 7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ tartományba esik. A lézer központi frekvenciáját úgy választjuk meg, hogy az kétfoton rezonánsan csatolja a kezdeti $|I\rangle$ alapállapotot és egy gerjesztett $|R\rangle$ állapotot (1.ábra(a)), melyek között a kiválasztási szabály tiltja az egyfotonos átmenetet ($\mu=0$). Az itt vizsgált egyelektronos modell atom esetén konkrétan az alap- és második gerjesztett állapotokat csatoljuk kétfoton rezonánsan $\omega = 5.25 \text{ eV}$ körfrekvenciájú lézer segítségével ($\hbar=1$ atomi mérték rendszerben) de természetesen más állapotpárok is választhatók lennének.

Ahogy az 1.ábra c) panelén látható, az alkalmazott lézerpulzus aktuális paraméterei mellett a kezdetben alapállapotú atom négy Rabi-oszcillációt végez két foton abszorpciójával és emittálásával az $|I\rangle$ és $|R\rangle$ állapotok között (kis mértékben a szomszédos 1-es és 3-as állapotok is populálódnak). Mindeközben az atom fokozatosan ionizálódik (zöld görbe, 1.ábra(c)). Az ionizált elektronok további fotonok elnyelése révén mind nagyobb energiára tesznek szert, amit jól szemléltet a spektrumban megjelenő egymástól ω távolságra lévő ATI csúcsok sorozata (1.ábra(b)). Az 1.ábra c) panelén szereplő elektronállapot betöltöttségek (populáció) a teljes időfüggő propagált hullámfüggvénynek ($\psi(x,t)$) az adott sajátállapotra történő projekciójával számolhatók ($pop_i = |\langle \psi | \psi_i \rangle|^2$). Az 1.ábra b) panelén látható fotoelektron spektrumot szintén a teljes időfüggő hullámfüggvényből származtathatjuk annak Fourier-transzformációjával ($Spektrum = |FT(\psi)|^2$).

Közelebbről nézve a spektrumot látható, hogy az ATI csúcsok azonos szerkezettel rendelkeznek, további interferencia mintázatot mutatnak. Az erős lézer hatására kialakuló dinamikus interferencia mintázatban négy kisebb csúcs figyelhető meg, továbbá az is látható, hogy a fő ATI csúcsok bal oldala magasabb mint a jobb oldal, valamint a fő csúcsok pozíciója a kisebb energiák felé tolódik a nominális pozícióhoz képest. Mindezekre a magyarázatot egy három állapotú minimális modell segítségével megadhatjuk, melyet lentebb mutatunk be.

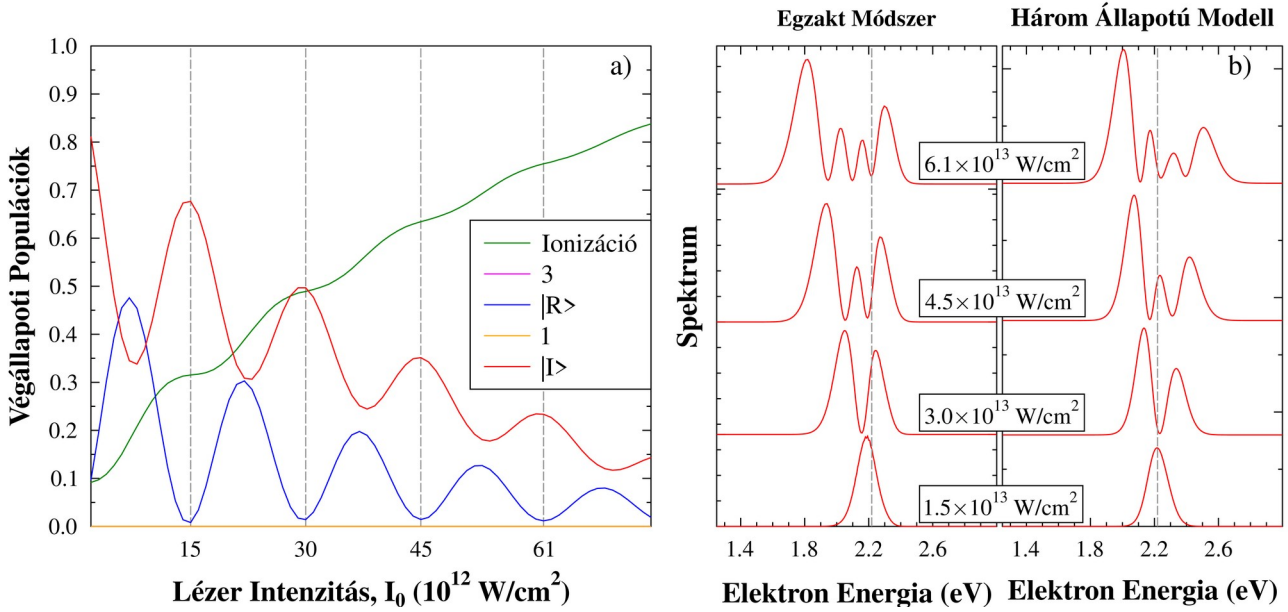


1.ábra (a) Alapállapotú atom többfotonos rezonancia-fokozott ionizációja. Kétfotonos gerjesztéssel az alap- és második gerjesztett állapotok között kiváltott Rabi-oszcillációt követően egy újabb foton elnyelésével a rendszer ionizálódik. (b) További fotonok elnyelése magasabb ATI csúcsok sorozatát eredményezi a spektrumban, melyek egy küszöb lézer intenzitás felett dinamikus interferencia mintázatot mutatnak. (c) A bemutatott példában a rendszer négy Rabi-oszcillációt végez, és (d) ennek megfelelően a spektrumban négy csúcs alakul ki. Az alkalmazott lézer paraméterek: $\tau=20$ fs, $\omega=5.25$ eV, $I_0=6.1 \times 10^{13}$ W/cm².

Az 1.ábrán mutatott konvergált spektrum számolása kihívást jelentő feladat még egydimenziós Coulomb modell atomok esetén is. Az interferencia mintázat megőrzése érdekében a teljes $\psi(x, t)$ hullámfüggvényre szükség van, ezért elnyelő potenciálok nem alkalmazhatók a rács szélein. Következésképpen óriási térbeli rácson kell megoldani a Schrödinger-egyenletet annak érdekében, hogy a pulzus ideje alatt ionizált elektronok ne érjék el a rács széleit, elkerülve ezáltal a zavaró reflexiót és transzmissziót. Az itt tekintett $\tau=20$ fs pulzushossz esetén a szükséges rácsméret a 15000 bohr tartományba esik, a $\psi(x, t)$ megfelelő pontosságú reprezentálásához pedig kb. 10^5 db rácspontra van szükség. Minél gyorsabb elektronokat (magasabb ATI csúcsokat) szeretnénk pontosan leírni, annál nagyobb rácsot és több rácspontot kell tekintenünk, ami jelentősen megnehezíti a dinamikus interferencia mintázat pontos leírását.

Az interferencia mintázatban mutatkozó aszimmetria (pl. első ATI csúcs, 1.ábra(d)) pontosabb megértése érdekében az egyszerűség kedvéért ezt követően csak az első ATI csúccsal foglalkozunk. Vizsgáljuk meg mi történik ha a lézer intenzitását fokozatosan növeljük abban a tartományban ahol először megjelenik majd tovább erősödik az interferencia mintázat. A kapott eredményeket a 2.ábra mutatja. Itt az a) panelen az látható, hogy I_0 növelésével az atom egyre több kétfotonos Rabi-oszcillációt végez az |I> és |R> állapotok között. A pulzus utáni végső populációk tanúsága szerint az első teljes Rabi-ciklust $I_0=1.5 \times 10^{13}$ W/cm² -en teljesíti a rendszer, amit aztán továbbiak követnek. A függőleges szaggatott vonalakkal jelölt lézer intenzitásokon számolt spektrumokat a 2.ábra b) panelének bal oldalán láthatjuk a propagált hullámfüggvényből számolva. Látható, hogy a Rabi-oszcillációk számának növekedtével együtt növekszik a spektrumbeli csúcsok száma is: egy

Rabi-ciklus esetén egy csúcsot, kettő Rabi-ciklus esetén két csúcsot stb. kapunk. Az is megfigyelhető, hogy a spektrum pozíciója kisebb energiák felé eltolódik, valamint az ATI csúcs szétnyílása az I_0 növelésével fokozódik.



2.ábra Intenzív lézerpulzussal kiváltott 2+1 fotonos rezonancia-fokozott ionizáció. (a) A lézer intenzitásának növelésével a rendszer egyre több Rabi-oszcillációt végez, miközben folyamatosan ionizálódik. A függőleges vonalak a b) panelen alkalmazott I_0 értékeket jelölik. (b) Az egész számú Rabi-oszcillációkhoz tartozó spektrumok egzakt propagációkból és a modell szerint számolva. A spektrum alakok kvalitatív egyezése a modell helyességét tükrözi ($\tau=20 \text{ fs}$, $\omega=5.25 \text{ eV}$).

Három állapotú minimális modell

A spektrumban tapasztalt fenti megfigyelések kvalitatív értelmezéséhez célszerű bevezetni egy három állapotú minimális modellt, mely észszerű egyszerűsítések mellett megragadja a vizsgált 2+1 fotonos REMPI folyamat fizikáját. Az [5]-ben felvázolt gondolatmenet általánosítása révén az alábbi mátrix egyenletet kapjuk a rezonánsan csatolt $|I\rangle$ és $|R\rangle$ állapotok valamint az $|\epsilon\rangle$ ion állapotok $c_k(t)$, $k=I, R, \epsilon$ populációs együtthatóira [9]:

$$i \begin{bmatrix} \dot{c}_I \\ \dot{c}_R \\ \dot{c}_\epsilon \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_I(t) & \Omega_2(t) & 0 \\ \Omega_2(t) & S_R(t) + \Delta - i/2\Gamma(t) & 0 \\ 0 & \Omega_1(t) & \Delta + \delta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} c_I \\ c_R \\ c_\epsilon \end{bmatrix} \quad (1)$$

Az (1)-ben megjelennek az időfüggő $S_k(t)$ Stark-eltolódások, valamint az $\Omega_1(t)$ egyfoton és az $\Omega_2(t)$ kétfoton Rabi-frekvenciák, és a $\Gamma(t)$ ionizációs ráta, mely az $|R\rangle$ állapot populációjának ionizáció miatt bekövetkező csökkenését írja le. Ezen mennyiségek egyaránt a pulzus burkolójának időlefolását követik és meghatározhatók a rendszer stacionárius hullámfüggvényeinek, valamint a lézer paramétereinek segítségével. Az alkalmazott pulzusunk kétfoton rezonánsan csatolja az $|I\rangle$ és $|R\rangle$ állapotokat, ezért a kétfotonos elhangolás $\Delta=0$. Végezetül pedig a δ egyfotonos elhangolás a spektrum nominális pozíciójához viszonyított energia különbséget méri a kontinumban.

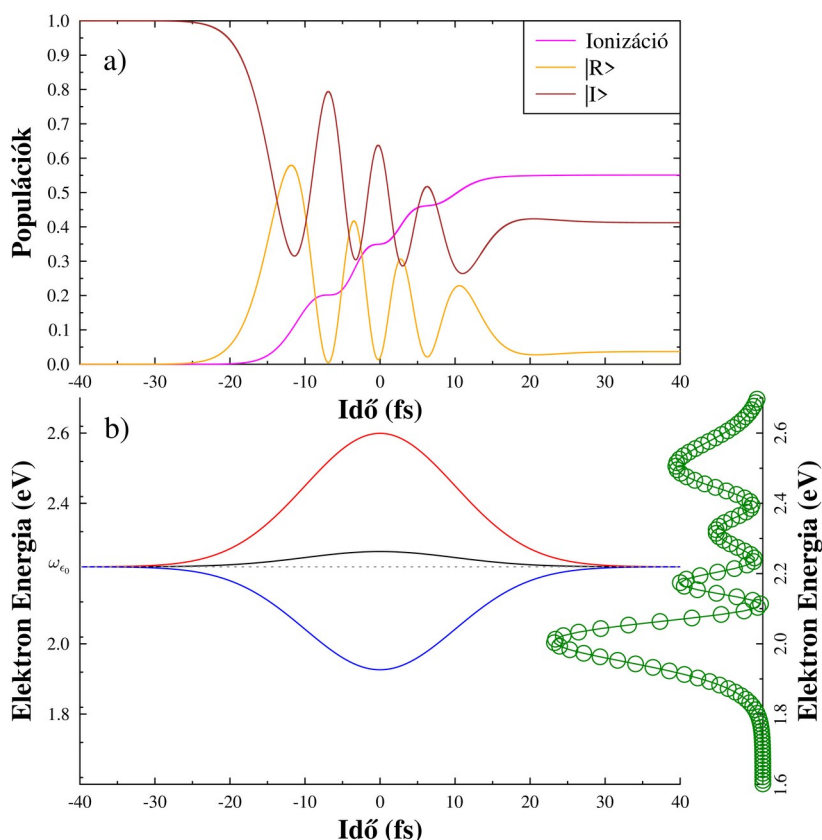
Az (1)-es egyenlet nagyon egyszerű és gyorsan megoldható (pl. Runge-Kutta módszerrel) minek eredményeképpen megkapjuk a $c_k(t)$ koefficiensek időfejlődését. Ezen koefficiensek pulzus utáni értékéből meghatározható az állapotok betöltöttsége az ionizáció végén. Ennek megfelelően a spektrumot az alábbi egyszerű összefüggéssel számolhatjuk a három állapotú minimális modell esetén: $\text{Spektrum}(\omega_\varepsilon) = |c_\varepsilon(t=\infty)|^2$, ahol $\omega_\varepsilon = \omega_{\varepsilon_0} + \delta$ a kilépő elektronok energiája ($\omega_{\varepsilon_0} = 3\omega - I_p$ a nominális spektrum pozíció).

Az (1)-es egyenlet megoldása révén kapott fotoelektron spektrumok a 2.ábra b) panelének jobb oldalán láthatók ugyanazon lézer pulzus paraméterek esetén mint a panel bal oldalán ábrázolt egzakt spektrumok. A két különböző módon számolt spektrum alakjának kvalitatív egyezése arra enged következtetni, hogy a modell megfelelően írja le a vizsgált folyamatot. Ez lehetőséget ad a spektrumalak értelmezésére.

3. Értelmezés

Az egzakt és modell spektrumok kvalitatív egyezésének köszönhetően (2.ábra(b)) az (1)-es egyenlet felhasználható a spektrum alakjának értelmezésére. Az (1)-ben pirossal bekeretezett 2x2-es almátrix írja le az $|I\rangle$ és $|R\rangle$ állapotok rezonáns lézerpulzus által kiváltott dinamikáját. A lézer erős csatolása révén két véges élettartamú rezonancia állapot alakul ki, melyek energiái időtől függőek és a fenti 2x2-es mátrix sajátértékeiként állnak elő [5,9]. A 2x2-es almátrix diagonalizációjával kapott rezonancia állapot energiákat a 3.ábra b) panelén láthatjuk a nominális pozícióhoz viszonyítva (piros és kék görbék). Ezen energia görbék a kontinumban közvetlenül tükrözik az emittált

elektronok energia eloszlását, ezáltal pedig a spektrum várható szélességét, eltolódását és alakját.



3.ábra (a) A 2+1 fotonos REMPI folyamatban az $|I\rangle$ és $|R\rangle$ állapotok betöltöttségei. (b) A rezonáns csatolás során kialakuló véges élettartamú rezonancia állapotok időfüggő energiái (piros és kék görbe) taszítják egymást követve a pulzus burkolóját. Ezen energiák felelősek a kilépő elektronok spektrumának (zöld görbe) alakjáért (részletek a szövegben). (lézerparaméterek: $\tau=20$ fs, $\omega=5.25$ eV, $I_0=6.1 \times 10^{13}$ W/cm².)

A pulzus felszálló ágában a rezonancia állapotok taszítják egymást, a leszálló ágban pedig újra közel kerülnek egymáshoz. Az eközben kilépő elektronok ezáltal egy széles energia tartományban emittálódnak (innen a spektrum kiszélesedése), továbbá a szétnyílás középvonala (folytonos fekete vonal) a nominális pozícióhoz képest eltérül (innen a spektrum eltolódása). Mindeközben a rendszer több Rabi-oszcillációt végez és az ionizáció ennek megfelelően adagokban következik be (3.ábra(a)). A pulzus felszálló ágában emittált elektronok pontosan ugyanakkora energiával rendelkeznek mint a leszálló ágban kilépők, ezáltal az időkésléltetés miatt a spektrumban interferenciát eredményeznek. A mintázatban megjelenő csúcsok száma pontosan tükrözi a rendszer által végzett Rabi-oszcillációk számát.

A spektrum aszimmetriája a rezonancia állapoti energiák eltérő nagyságával magyarázható. A nagyobb energiájú rezonancia állapot energiája távolabb esik a nominális pozíciótól mint az alacsonyabbé, ezáltal a piros görbe görbülete nagyobb mint a kék görbéé a pulzus maximumának pillanatában amikor a legvalószínűbb az ionizáció. Következésképpen a felső ágban (piros görbe) kilépő elektronok egy szélesebb energia tartományt ölelnek fel és itt a spektrum emiatt alacsonyabb, ellenben az alsó ágon (kék görbe) kilépő elektronok keskenyebb energia sávban oszlanak el és ezért ott a spektrum magasabb.

A dolgozatban bemutatott modell jól leírja a spektrum főbb jellemzőit, azonban a spektrum eltolódásában eltéréseket találunk az egzakt esethez képest. Ennek feloldása a kontinuum állapotok Stark-eltolódásának (ponderomotív energia) figyelembe vételével tehető meg a későbbiekben, minekután a modell kvantitatív analízisre is alkalmassá válik.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosítójú, EU társfinanszírozású projekt támogatta.

Irodalom

- [1] K. Toyota, O.I. Tolstikhin, T. Morishita, S. Watanabe, Phys. Rev. A **76**, 043418 (2007)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.76.043418>
- [2] P.V. Demekhin and L.S. Cederbaum, Phys. Rev. Lett. **108**, 253001 (2012)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.253001>
- [3] M. Baghery, U. Saalman, J.M. Rost, Phys. Rev. Lett. **118**, 143202 (2017)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.143202>
- [4] W.C. Jiang and J. Burgdörfer, Optics Express **26**, 19921 (2018)
<https://doi.org/10.1364/OE.26.019921>
- [5] P.V. Demekhin and L.S. Cederbaum, Phys. Rev. A **86**, 063412 (2012)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.063412>
- [6] A.D. Müller, E. Kutscher, A.N. Artemyev, L.S. Cederbaum, P.V. Demekhin, Chem. Phys. **509**, 145 (2018)
<https://doi.org/10.1016/j.chemphys.2017.10.004>
- [7] A.A. Silaev, M.Yu. Ryabikin, N.V. Vvedenskii, Phys. Rev. A **82**, 033416 (2010)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.033416>

[8] C.M. Dion, A. Hashemloo, G. Rahali, Comput. Phys. Comm. **185**, 407 (2014)
<https://doi.org/10.1016/j.cpc.2013.09.012>

[9] A. Tóth, A. Csehi, publikálás alatt (2020)

STATUS of SHORT-PULSE KrF AMPLIFIER RESEARCH and DEVELOPMENT at HILL, SZEGED

S. Szatmári^{1,2*}, Z. Szántó², R. Bognár², R. Dajka^{2,3}, I. B. Földes^{2,4}

¹*Department of Experimental Physics, University of Szeged, Dóm tér 9, H-6720 Szeged, Hungary*

²*Institute of Physics, University of Szeged, Dóm tér 9, H-6720 Szeged, Hungary*

³*Department of Photonics and Laser Research, Interdisciplinary Excellence Centre, University of Szeged, Dugonics tér 13, H-6720 Szeged, Hungary*

⁴*Department of High Energy Experimental Particle and Heavy Ion Physics, Wigner Research Centre for Physics, H-1121 Budapest, Hungary*

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.32>

Abstract

The small saturation energy density of excimers requires amplifiers of large cross-sections for amplification of short pulses of already medium power. Homogeneous excitation of large volumes of Fluorine-based gas mixtures by discharge pumping is a critical interplay of the properties of both pumping and preionization; generally necessitating an intense, spatially and temporally controlled x-ray preionization.

In the present realization at High Intensity Laser Laboratory (HILL) the stringent intensity requirements of preionization are fulfilled by reducing the pulse duration of the x-ray flash to ~16 ns, and by positioning the x-ray source in the near vicinity of the active volume. By proper choice of the positions of two cylindrical x-ray guns the spatial distribution of preionization can be tuned to (and around) the optimum distribution giving a practical method to compensate for eventual inhomogeneities of the E-field of excitation and to tune the discharge to the desired geometry.

In this way the realization of a KrF excimer amplifier of ~5 x 4 cm² cross-section is presented.

I. Introduction

In the view of the recent progress of IR solid-state laser systems high-brightness ultraviolet (UV) excimer lasers can be regarded as complementary sources. Their main advantage occurs mainly in those experiments where high photon energy, optimum spatial concentration and/or efficient conversion of the pulse energy to radiation of even shorter wavelength are needed [1, 2]. At present the maximum peak power of short-pulse excimer systems is limited to the TW level [1, 2, 4, 5] by the difficulties associated with the construction of short-pulse UV amplifiers [1, 2] and by the inherently limited energy extraction from excimer amplifiers of short energy storage time [1, 3].

Excimers are ideal four-level systems allowing very efficient operation even in the UV for pulses longer than the storage (or pumping) time. However, they exhibit moderate extraction efficiency for shorter pulses, because of the relatively short (several ns) storage time compared to the accessible pumping times (several times 10 ns, or more).

The saturation energy density of excimers is very low compared to solid-state systems; typically is in the range of several mJ/cm². In KrF power amplifiers the optimum operation both for efficiency and contrast is a critical function of the energy density [1, 6], which can only be maintained when the energy density is set to $\epsilon_{\text{opt}} \approx 2.2 \times \epsilon_{\text{sat}} \approx 4.5 \text{ mJ/cm}^2$ [1, 2, 6, 7]. This condition requires large amplifier cross-sections already for moderate output energies.

Due to these requirements, pumping of excimer gain modules can only be realized by an efficient and temporally short pumping mechanism capable of homogeneously excite a large volume of large cross-section in a short time comparable to the energy storage time. Discharge pumping of excimers is more

straightforward for many practical reasons, however special considerations and corresponding steps are needed to homogeneously deposit the electric energy [4, 5, 9, 10].

It is known from former gain dynamic studies [1, 8], that it is only KrF and ArF which acts as a real four-level system when short-pulse amplification is needed, allowing good access to the momentarily stored energy. On the other hand these are just the excimers where homogeneous excitation of the initial Fluorine-based gas mixture is the most critical; special measures are needed to ensure arc-free, homogeneous excitation of large volumes [11]. One needs a fast rising, temporally clean electric pulse to produce a highly uniform electric field together with a fast and efficient preionization of the gas characterized by a similarly uniform spatial distribution of the generated electrons (ions).

From the optical point of view a circular cross-section is ideal, necessitating a discharge cross-section of $w/d \approx 1$ aspect ratio (where w is the width of the discharge, d is the separation between the electrodes). A discharge of large cross section and of aspect ratio, however, necessitates the use of x-ray preionization which is known to be capable of homogeneously ionizing large volumes [9, 11-14]. The large penetration depth (small absorption coefficient) of the x-ray radiation in the gas mixture is a necessary condition to achieve spatially uniform ionization. The small absorption, however, minimizes the absorbed energy. This sets stringent requirements to the strength of the x-ray source. Because of the very fast (a few times 10 ns) recombination of the electrons in the Fluorine-based gas mixtures, preionization must be comparably fast, necessitating an intense x-ray source of similar or shorter duration precisely synchronized to the main pumping pulse. A possible way to increase the intensity of x-rays is to decrease the spatial separation of the x-ray source and the gas volume to be preionized. This, however, generally leads to a spatially inhomogeneous intensity distribution.

Former investigations showed that the spatial distribution of the discharge is the critical interplay of that of both the E-field and the preionization [15]. For a given E-field distribution this makes, in principle possible to fine-tune the discharge geometry by controlling the spatial characteristics of preionization.

Based on the geometrical requirements imposed by the planned volume of $\sim 40 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ to be preionized, and by our former experimental experience associated with the development of pencil-like, pulsed, x-ray sources of reflective geometry, in this paper design considerations and first results are reported for a large aperture, short-pulse KrF amplifier module, preionized by a spatially-tunable, twin x-ray gun.

II. Experimental realization

1. x-ray preionizer/driving circuit

As it is described in the Introduction, a spatially elongated, intense x-ray source of short pulse duration is mandatory for efficient preionization of a transversally pumped KrF excimer gas mixture. For practical reasons (described later) our development was concentrated on the realization of a twin, cylindrical x-ray gun powered by a common power supply. With regard to the pulsed operation required here a pulsed plasma electron source was chosen as the (cold) cathode of the x-ray gun [16]. Among the possible cathode designs the so-called carbon-epoxy capillary cathode design was selected [17]. The realization of the x-ray gun is shown in Fig. 1. The diode is formed by a cylindrical tungsten anode of 6.3 mm diameter and 50 cm length, positioned in the centre of a glass tube of 40 mm diameter and 1.5 mm wall thickness. This anode is supported at both ends of the tube by insulators far away from the ends of the somewhat shorter cathode of $\sim 40 \text{ cm}$ length. The cathode is an array of carbon-epoxy capillaries (Van Dijk Pultrusion Products). Detailed structure of the cold-cathode diode of the x-ray gun is also shown in Fig. 1; by the enlarged – side and cross-sectional – view of the central portion of the tube. The anode is fed by a $\sim 100 \text{ kV}$ positive voltage pulse at one end of the evacuated tube, which is directly connected to an oil-filled cylindrical pulse forming line (which connects at the same time the x-ray gun to the power supply).

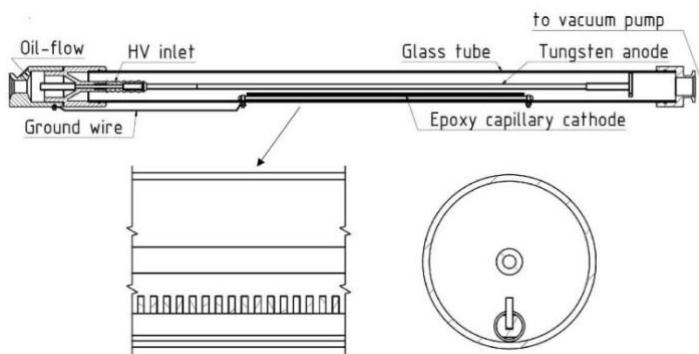


Figure 1 Schematics of the cold-cathode x-ray gun of cylindrical geometry

A special pulsed power supply was developed, which could drive both diodes by a synchronized >100 kV electric pulses of ~ 30 ns duration, and of ~ 20 ns risetime, as shown by curve U in Fig. 2. Curve I is the corresponding current, measured at the same point by a Rogowski pick-up coil.

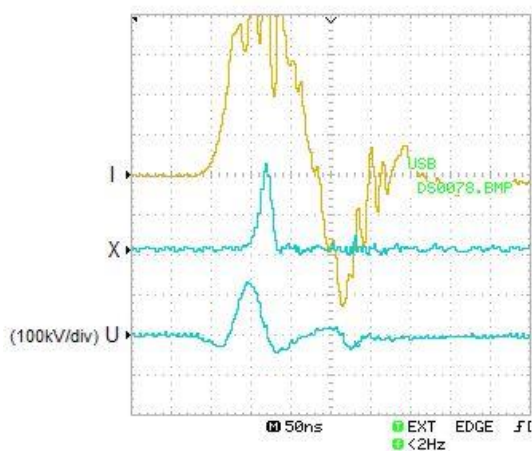


Figure 2 Temporal behavior of the current (I), the voltage (U) and the x-ray pulse (X) of the preionizer

The dose and the temporal behavior of the x-ray radiation generated by one diode was determined by an ionization chamber and by a fast silicon-diode amplifier arrangement, both positioned 10 cm away from the cylindrical anode of the x-ray gun. The x-ray dose (for one x-ray gun) was measured to 11 mR and the FWHM of the x-ray pulse was 16 ns. The oscilloscope trace of the latter measurement is shown in Fig. 2 by curve X. The 16 ns temporal width for the x-ray pulse is obtained through deconvolution of the measured value by the 10 ns resolution of the detection system. Note, that the very short duration of x-rays compared to the former approaches is a real advantage in minimizing the necessary electric energy, while reaching even larger electron density. It means that using a short (20 ns) x-ray pulse (of the same, 30 mR dose) an electron density of 3×10^8 1/cm³ and 4×10^8 1/cm³ can be reached for Xe/He and Xe/Ne-based Fluorine gas mixtures. On the other hand, if one uses a 400 ns long x-ray pulse (as in many former experiments) the electron density remains definitely below 10^7 1/cm³.

2. Discharge chamber / charging scheme

Our aim was to homogeneously pump a $40 \times 5 \times 5$ cm³ volume of a KrF gas mix. The cross-sectional view of the discharge chamber accommodating to this condition is shown in Fig. 3. The upper (cathode) and lower (anode) electrodes together with the electrode-holder plates are made of aluminum. The cathode is a flat electrode, while the anode is designed to homogeneously pump (to ensure homogeneous E-field distribution over) a 5×5 cm² region (marked by dashed lines). The insulator – forming the side walls of the chamber – is made of PVDF. Twin x-ray tubes are indicated in Fig. 3 (marked by X) for preionization through the cathode. In order to make the discharge area “accessible” by x-rays, windows are milled out on the upper electrode and on the electrode holder plate. The geometry of these windows is also seen in Fig. 3, allowing the irradiation of the pumped volume by two x-ray guns in a large solid angle. The remaining thickness of the windows is 0.7 mm.

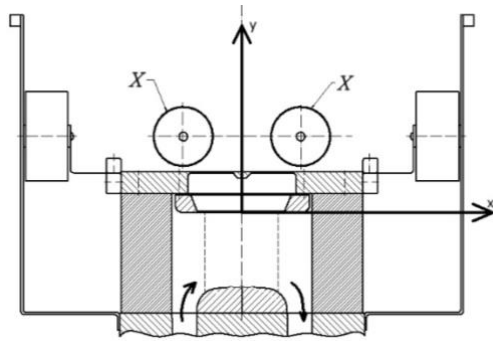


Figure 3 Cross-sectional view of the discharge chamber allowing x-ray preionizations by two x-ray guns (X).

The laser chamber was connected to a gas reservoir/circulating fan (Lambda Physik Göttingen GmbH) allowing efficient transversal gas circulation in the chamber (indicated by arrows in the Figure), thus promoting high rep-rate operation.

In order to identify the different positions of the preionizers, a coordinate-system – centered to the axis of the cathode electrode as used in our calculations – is also shown in the Figure. For the characterization of the positions of the x-ray guns – arranged always symmetrically to the y axis – their horizontal spatial separation ($\Delta x = 2x$) and their y coordinates are used (for further details see next section).

The electric charging circuit – shown in Fig. 4 – is a standard, thyatron (CX1573C, E2V Technologies) driven L-C inversion circuit, completed by a magnetic switch compressor (MSC) technology. For the given value of the main capacitor bank ($C_1 = C_2 = 96$ nF, determined by the electric energy to be transferred) the inversion time is synchronized to the switching of MSC by proper choice of L and of the cross-section of the core of the MSC (Metglas 2605 Co) surrounded by a “spatially distributed coil” of 1 winding. The peaking capacitance $C_3 = 50$ nF is equally distributed along the two sides of the discharge chamber (see also Fig. 3). With the use of this charging circuit a 60 kV electric pulse of 120 ns risetime could be produced on the cathode electrode, at a $U_0 = 32$ kV power supply voltage.

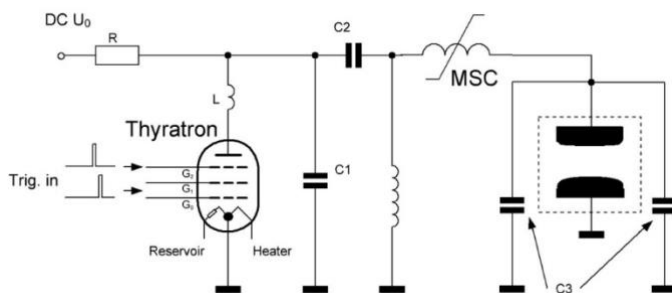


Figure 4 Schematics of the L-C inversion and magnetic switch compressor (MSC) based charging circuit

Temporal behavior of this pulse (curve U) is shown in Fig. 5 at $U_0 = 30$ kV. Curve I is the discharge current, which is picked up by pick up coil, inserted into the discharge loop.

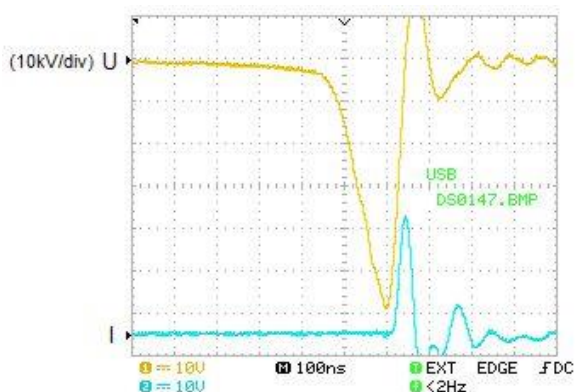


Figure 5 Temporal behavior of the electric pulse measured on the cathode electrode (curve U) and of the discharge current (curve I)

The short duration of the preionization process and that of the main discharge requires exact synchronization of the two charging circuits, including the compensation of their long-term drift (mainly initiated by the thyratrons). For this purpose an automatic synchronization unit – based on optical fiber communication – was developed, to compensate for the long-term drift, in 5 ns steps. In the case of all the following comparative measurements the same gas mixtures were used (120 mbar He with 5% F₂, 150 mbar Kr filled up to 2.0 bar with He).

III. Results

Spatial distribution of the x-ray field of preionization

In this section the results of our considerations, numerical calculations and of corresponding measurements for the spatial distribution of the x-ray intensity are presented. Since absorption of x-rays in the KrF gas mixture is weak, its contribution to the spatial distribution was neglected. Based on the cylindrical emission geometry of the x-ray sources, r^{-1} spatial dependence of the x-ray intensity was assumed/used in our calculations.

In Fig. 6 the calculated horizontal distribution of the x-ray intensity for a given ($\Delta x = 80$, $y = 45$) position of the two cylindrical x-ray sources is shown by solid lines in different horizontal planes thorough the discharge volume (for different values of y). The shape of the curves changes from convex to concave (through a flat) as y changes. The two dashed lines confine again that region, where homogeneous pumping is provided. Most homogeneous preionization seems to be best fulfilled in a plane characterized by $y = -10$ (10mm below the cathode electrode).

All these calculations were confirmed by measurements; the spatial dependence of the x-ray intensity along the x-axis was measured for different y values. This measurement clearly confirmed the results of calculations.

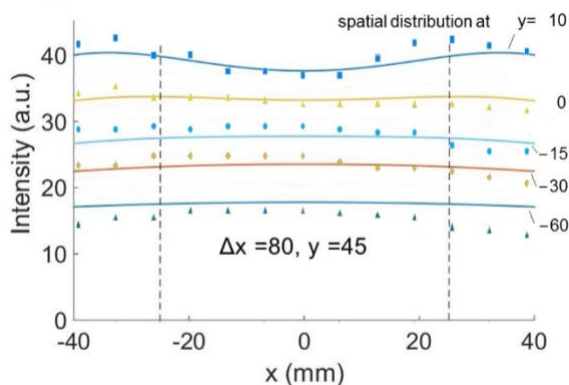


Figure 6 Calculated distribution of the x-ray field (solid lines) along the x axis for different values of y (when the position of the x-ray guns is $\Delta x = 80$, $y = 45$). The points are measured values.

It is a reasonable assumption that along the electric field vectors in the pumped area (along the y axis in Fig. 3) it is the integral (or the average value) of the x-ray field strength which determines the (integrated) effect of preionization for a fixed value of x . Performing such calculations, the resulting curves show that by changing (symmetrically) the horizontal positions of the x-ray sources (changing their Δx horizontal separation from 70 mm to 100 mm) the “integrated” distribution can also be tuned to either concave or to convex. The main claim of these considerations is that using line-emitting x-ray sources of cylindrical emission geometry, even in the near vicinity of the discharge volume, homogeneous (integrated) x-ray distribution can be achieved along the axis perpendicular to the E-field. This offers to fulfill the most important necessary condition for homogeneous energy deposition by the discharge. Moreover, by changing the horizontal spatial separation of the x-ray sources, easy tuning can be realized; either the middle or the outer sections of the discharge volume are irradiated more intensively, which can compensate for eventual inhomogeneities of the E-field of excitation. In this way the desired discharge geometry can be produced in a technically simple way, which is of great practical importance.

Under these optimized experimental conditions the spatial distribution of the emission of the KrF amplifier module was measured; in a free running oscillator mode the spatial distribution of the emission is shown in Fig. 7 indicating a homogeneous flat-topped distribution.

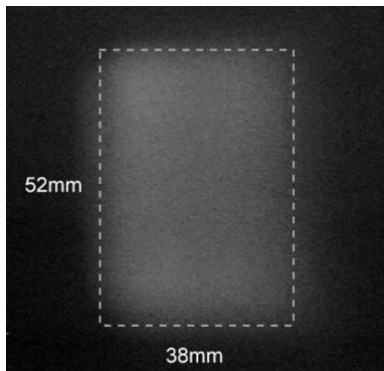


Figure 7 Spatial distribution of the output beam.

Acknowledgements

This work was supported by the European Social Fund EFOP-3.6.2-16-2017-00005 - Ultrafast physical processes in atoms, molecules, nanostructures and biological systems. We are grateful to the support (Hungary grant NKFIH-1279-2/2020-TKP2020 of Ministry of Innovation and Technology). The authors thank E. Müller-Horsche (Hochschule Augsburg), Ya. E. Krasik (Israel Institute of Technology) and G. Firla (VAC GmbH, Germany) for valuable discussions, B. Gilicze, B. Csánk and L. Gyihor for their participation in some parts of this R&D activity.

References

- [1] S. Szatmári, G. Marowsky and P. Simon, Landolt–Börnstein - Group VIII **1B1** (Eds. G. Herziger, H. Weber, R. Poprawe), 215 (2007).
https://doi.org/10.1007/978-3-540-44821-1_5
- [2] A. B. Borisov, C. J. McCorkindale, S. Poopalasingam, J. W. Longworth, P. Simon, S. Szatmári and C. K. Rhodes, Reports on Progress in Physics **79**, 046401 (2016).
<https://doi.org/10.1088/0034-4885/79/4/046401>
- [3] S. Szatmári, P. Simon, Optics Communications **98**, 181 (1993).
[https://doi.org/10.1016/0030-4018\(93\)90777-3](https://doi.org/10.1016/0030-4018(93)90777-3)
- [4] S. Szatmári, F.P. Schäfer, E. Müller-Horsche, W. Mückenheim, Optics Communications **63**, 305 (1987).
[https://doi.org/10.1016/0030-4018\(87\)90181-7](https://doi.org/10.1016/0030-4018(87)90181-7)
- [5] R. Nodomi ; Y. Oeda ; K. Sajiki ; S. Nakajima ; M. Watanabe ; S. Watanabe, IEEE Journal of Quantum Electronics **27**, 441 (1991).
<https://doi.org/10.1109/3.81344>
- [6] G. Almási, S. Szatmári, P. Simon, Optics Communications **88**, 231 (1992).
[https://doi.org/10.1016/0030-4018\(92\)90513-Q](https://doi.org/10.1016/0030-4018(92)90513-Q)
- [7] S. Szatmári, G. Almási, P. Simon, Applied Physics B **53**, 82 (1991).
<https://doi.org/10.1007/BF00325535>
- [8] S. Szatmári, F.P. Schäfer, Journal of Optical Society of America B **4**, 1943 (1987).
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.4.001943>
- [9] H. Mizoguchi, A. Endoh, J. Jethwa, B. Rácz, F. P. Schäfer, Applied Physics B **52**, 195 (1991).
<https://doi.org/10.1007/BF00750951>

- [10] G. Kovács, S. Szatmári, *Measurement Science and Technology* **5**, 127 (1994).
<https://doi.org/10.1088/0957-0233/5/2/008>
- [11] H. Shields, *SPIE Proceedings* **1046**, 15 (1989).
<https://doi.org/10.1117/12.951330>
- [12] C. Tallman, *SPIE Proceedings* **1046**, 2 (1989).
<https://doi.org/10.1117/12.951329>
- [13] K. Midorikawa, M. Obara, T. Fujioka, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **20**, 198 (1984).
<https://doi.org/10.1109/JQE.1984.1072388>
- [14] M. Steyer, *Journal of Physics D: Applied Physics* **23**, 18 (1990).
<https://doi.org/10.1088/0022-3727/23/1/004>
- [15] M. S. Pronko, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **30**, 2147 (1994).
<https://doi.org/10.1109/3.309877>
- [16] Ya. E. Krasik, D. Yarmolich, J. Z. Gleizer, V. Vekselman, Y. Hadas, V. Tz. Gurovich, and J. Felsteiner, *Physics of Plasmas* **16**, 057103 (2009).
<https://doi.org/10.1063/1.3085797>
- [17] J. Z. Gleizer, T. Queller, Yu. Bliokh, S. Yatom, V. Vekselman, Ya. E. Krasik, and V. Bernshtam, *Journal of Applied Physics* **112**, 023303 (2012).
<https://doi.org/10.1063/1.4739258>

20 MHZ, SUB-PS, TUNABLE TI:SAPPHIRE LASER SYSTEM FOR REAL TIME, STAIN FREE, IN VIVO HISTOLOGY OF THE SKIN

Róbert Szipőcs^{1,2}, Luca Fésűs^{1,3}, Ádám Krolopp^{1,2}, Ernő Hettinger^{1,2}, Lajos Vass², Norbert Wikonkál^{1,3}, Péter Török⁴, Gábor Molnár⁵, Gábor Tamás⁵

¹Wigner RCP, Institute for Solid State Physics and Optics, P.O. Box 49, H-1525 Budapest, Hungary

²R&D Ultrafast Lasers Ltd, Konkoly-Thege str 29-33, H-1121 Budapest, Hungary

³Department of Dermatology, Venereology and Dermatocology, Semmelweis University, Budapest, Hungary

⁴Nanyang Technological University, Environmental Life Sciences Engineering, Singapore 639798, Singapore

⁵MTA-SZTE Research Group for Cortical Microcircuits, University of Szeged, Szeged, H-6726, Hungary

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.33>

1. Introduction

Coherent anti-stokes Raman scattering (CARS) [1] microscopy is widely used in label-free biomedical imaging applications. For *in vivo* diagnostic use of CARS microscopy, wide field detection is preferred to descanned configurations [2]. Chemical selectivity poses a major difficulty when femtosecond (fs) pulse lasers are applied, as their spectral bandwidth is typically significantly higher (~5-10 nm) than the optimum value (~1 nm) matching the bandwidth of molecular vibrations. This fact leads to the appearance of an enhanced non-specific background and the decrease of spectral sensitivity in CARS imaging. Two years ago we proposed a fast spectral modulation technique for sub-100 fs pulse Ti:S lasers [3], which allowed us to modulate the laser spectrum on ms time scale with the use of a piezo-driven Michelson interferometer. In one of the settings we used, we modulated the laser spectrum of our laser in such a way, that CARS imaging for CH₂ bonds in “lipids” and CH₃ bonds “proteins” did not require any tuning of the pump (Ti:S) laser or any readjustment of the delay between the pump and Stokes (Yb-amplifier) pulses, which allowed us to record stain-free histological images [4] of brain slices. In this paper we report on a newly developed, ~20 MHz, sub-ps Ti:sapphire laser system, which supports real time, *in vivo*, two-channel, high chemical contrast, DVRF CARS imaging, i.e. histology of the skin by a commercial LSM 7 MP microscope (Carl Zeiss, Jena, DE) without any modification of its ZEN software or post-processing of the images like in case of our previous CARS setups used for histology [3,4].

2. Experimental setup

For our comparative studies, we used two different CARS imaging setups, as shown in Fig.1. In our setup at the University Szeged (USZ) [3,5], we used a ~80 MHz, ~80 fs Ti:S laser (Mai Tai, Newport Spectra-Physics, USA) as a pump laser (for details, see Refs. 3 and 5). In the setup at Wigner RCP, Budapest [1,4], we replaced our ~76 MHz, ~150 fs Ti:S laser by a newly developed, ~20 MHz repetition rate, sub-ps Ti:S laser (FemtoRose TUN LC GTI, R&D Ultrafast Lasers Ltd.). The long cavity laser configuration was similar to that was published in Ref. 6, with a few modifications, among them the most critical was the following: we replaced the SF10 prism pair by a Gires-Tournois interferometer, which provided considerably higher intracavity dispersion than the prism pair previously used. Beside a birefringent tuning element, fine tuning of the Ti:sapphire laser was obtained by the piezo controlled GTI. In our new setup, the spectral bandwidth of the pump (Ti:S) laser was reduced from 6-8 nm to ~1-2 nm. Accordingly, the pulse duration increased from ~150 fs to ~600 fs, or slightly above. This four-fold reduction in the peak intensity was compensated by the lower repetition rate of our long cavity Ti:sapphire laser comprising a Herriott-cell and a ~2W average power, 532 nm pump laser [6]. Pulse duration of the ~20 MHz laser was characterized by a PulseCheck autocorrelator (APE GmbH, DE). Depending on the intracavity

dispersion set by the mirror spacing of an intracavity GTI, the pulse duration could be set in the 0.6-1 ps range. Spectral bandwidth of the ~ 20 MHz Ti:sapphire laser (pump) was measured $\Delta\lambda < 2$ nm allowing high spectral resolution DVRF-CARS imaging. For higher spectral contrast between the anti-Stokes signals generated by „lipids” and „proteins”, we placed a Michelson interferometer similar to that was used in Ref. 3 into the beam path of our Stokes (Yb) laser. By spectral modulation, we obtained a double peaked spectrum with a peak separation of 5-6 nm at around 1030 nm. DVRF CARS imaging was performed by two NDD detectors of our microscope: the anti-Stokes signals for „lipids” and „proteins” were separated by a dichroic mirror with a long pass edge at around 645 nm, while two bandpass filters with central wavelengths at 641 nm and 650 nm were respectively placed in front of the NDD-s. The optical signal detected by the „lipid” detector was pseudo-colored red, while that of the „protein” was given the color blue to match conventional H&E stained histology.

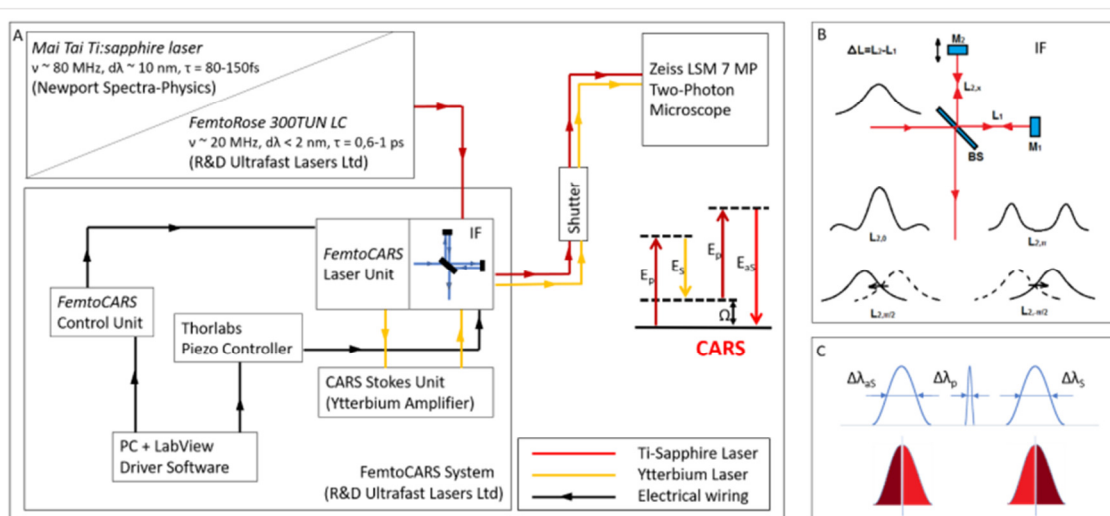


Figure 1

(A) Layout of the experimental setups used for IF-CARS [3] and real time DVRF CARS imaging with our newly developed, ~ 20 MHz, sub-ps Ti:S laser. In both setups, a Michelson-interferometer is used for spectral modulation of either the pump (IF-CARS setup, [3]) or Stokes pulses (real time DVRF CARS setup). By electronically modulating the phase difference ($\Delta\phi$) of the two mirrors, different output spectra can be obtained. B) Phase difference $\Delta\phi = 0$ at the central frequency results in a narrower spectrum, whereas $\Delta\phi = \pi$ results in a double-peaked spectrum around the central wavelength, when the path difference offset, ΔL is properly set. When the phase difference is $\pi/2$ or $-\pi/2$, two different spectrally shifted laser spectra is obtained with two maxima a few nm-s apart [3]. C) For high chemical contrast, real time DVRF-CARS imaging with two parallel NDD detectors, at least one of the pump or Stokes laser spectral bandwidth has to be small enough (< 2 nm) to create properly distinguishable anti-Stokes signals. If $\Delta\lambda_p$ is small (~ 2 nm) and $\Delta\lambda_s$ is broader (~ 10 nm), nearly half of the Stokes photons (of lower energy) excites the CH_2 bonds in lipids, while others (of higher energy) excite the CH_3 -bonds in proteins.

3. Results

Histological imaging experiments on *ex vivo* human and murine skin samples by different CARS imaging methods are summarized in Fig. 2 and Fig. 3. In Fig 2A, a “quasi-H&E color encoded”, composite, CARS image is shown (after post-processing), for which two CARS images were recorded for „protein” and „lipid” settings in human basal cell cancer (BCC). For recording of these, a Mai Tai pump laser was respectively tuned to 790 and 798 nm [4]. In Fig. 2B), an IF-CARS histological image of murine skin (after post-processing) is shown, for which a spectrally modulated Mai Tai pump laser was used for recording “protein” and “lipid” CARS images with optical pulses with spectral maxima at 792 and 796 nm, respectively [3].

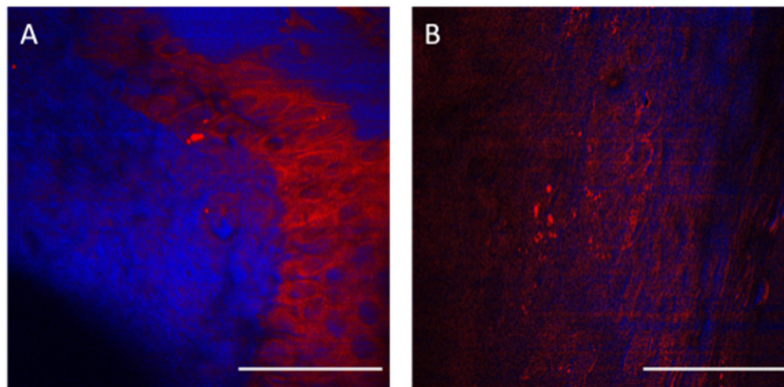


Figure 2

Histological imaging of ex vivo human and murine skin samples by different CARS imaging methods. A) Composite of CARS images recorded for „proteins” and „lipids” in human basal cell cancer (after post-processing) with a Mai Tai pump laser tuned to 790 and 798 nm, respectively [4]. Time required for recording and processing: c.a. 5 min. B) IF-CARS imaging of murine skin (after post-processing) with spectrally modulated Mai Tai pump laser pulses with spectral maxima at 792 and 796 nm [3]. Time required for recording and processing: c.a. 5 sec. Scalebar on both figures: 50 μm

In Fig. 3, we compare stain free histological images of skin samples by parallel, two-channel detection of “protein” and “lipid” CARS signals, referred to as DVRF CARS, for which we used a i.) ~ 80 MHz repetition rate, ~ 80 fs ($\Delta\lambda \sim 10$ nm) Mai Tai pump laser tuned to 796 nm (Fig. 3A), and ii.) our newly developed, ~ 20 MHz repetition rate, ~ 0.8 ps ($\Delta\lambda \sim 1$ nm) FemtoRose TUN LC GTI pump laser tuned to 794 nm together with a Yb-fiber laser having a double-peaked (off resonance, see Fig. 1b) spectrum.

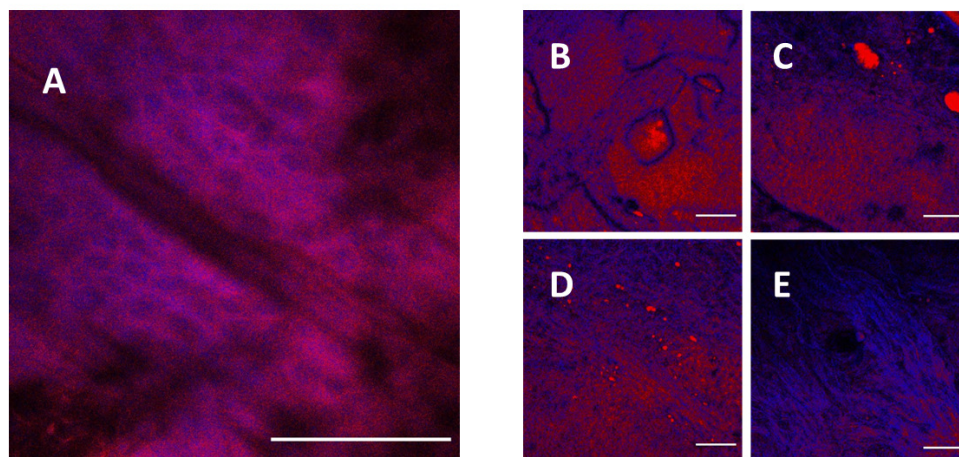


Figure 3

Stain free histological imaging of skin samples by DVRF CARS A.) Post-processed DVRF-CARS image of an ex vivo murine skin sample using a **~ 80 MHz repetition rate, ~ 80 fs ($\Delta\lambda \sim 10$ nm) Mai Tai pump laser** tuned to 796 nm with simultaneous detection of the two anti-Stokes signals. Time required for recording and processing: c.a. 1 sec. B-E) Real time, DVRF-CARS images of ex vivo human skin with simultaneous detection of the lipid ($\nu\text{-CH}_2$ vibration) and protein ($\nu\text{-CH}_3$ vibration) channels with a **~ 20 MHz repetition rate, ~ 0.8 ps ($\Delta\lambda \sim 1$ nm) FemtoRose TUN LC GTI pump laser** tuned to 794 nm and with a double-peaked (off resonance, see Fig. 1b) Yb-laser spectrum. Time required for recording and processing: c.a. 0.1-1 sec. Nuclei and hair appear in blue, cytoplasm and cell membrane in red. Scalebar on each figure: 50 μm . Resolution in each Figure: 512x512 pixels.

4. Conclusions

As a main result, we can say that our new, ~20 MHz, sub-ps Ti:S laser system supports real time, two-channel, high contrast, dual vibration resonance frequency (DVRF) CARS imaging, i.e. histology of the skin by a LSM 7 MP microscope with its original ZEN software, with properly chosen commercial bandpass and dichroic filters in front of the two NDD detectors and without any post-processing of the images like in case of our previous CARS setups used for histology [3,4]. We found that this new setup can also be used for real-time, *in vivo* experiments on murine skin samples, or real-time, *ex vivo* analysis on human pathological skin or brain tumor samples, which, in longer term, may pave the way for clinical applications during tumor surgery. Further details can be found in Ref. [7] and in corresponding oral presentation available at Biophotonics Congress 2020 web-site.

Acknowledgements

This research was funded by the National Research, Development and Innovation Fund of Hungary, contract No. K_129047 of Wigner RCP and by R&D Ultrafast Lasers Ltd.

References

- [1] D. Haluszka, K. Lőrincz, N. Kiss, R. Szipőcs, E. Kuroli, N. Gyöngyösi, N. Wikonkál, "Diet-induced obesity skin changes monitored by *in vivo* SHG and *ex vivo* CARS microscopy," *Biomed. Opt. Express* **7**, 4480–4489 (2016).
<https://doi.org/10.1364/BOE.7.004480>
- [2] A. Duarte, C. Schnedermann, P. Kukura, "Wide-Field Detected Fourier Transform CARS Microscopy," *Scientific Reports* **6**, 37516 (2016).
<https://doi.org/10.1038/srep37516>
- [3] G. Molnár, Á. Krolopp, N. Kiss, G. Tamás, R. Szipőcs, "Interferometric Spectral Modulation of sub-100-fs Pump Pulses for High Chemical Contrast, Background Free, Real Time CARS Imaging," *Biomedical Optics Congress 2018, OSA Technical Digest*, paper JTh3A.29 (2018)
<https://doi.org/10.1364/TRANSLATIONAL.2018.JTh3A.29>
- [4] N. Kiss, Á. Krolopp, K. Lőrincz, A. Bánvölgyi, R. Szipőcs, and N. Wikonkál, "Stain-free Histopathology of Basal Cell Carcinoma by Dual Vibration Resonance Frequency CARS Microscopy," *Pathol. Oncol. Res.* **24**, 927-930 (2018).
<https://doi.org/10.1007/s12253-017-0356-6>
- [5] A. Ozsvár, R. Szipőcs, Z. Ozsvár, J. Baka, P. Barzó, G. Tamás, and G. Molnár, "Quantitative analysis of lipid debris accumulation caused by cuprizone induced myelin degradation in different CNS areas," *Brain Research Bulletin* **137**, 277-284 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.brainresbull.2018.01.003>
- [6] P. Antal, R. Szipőcs, "Tunable, low-repetition-rate, cost-efficient femtosecond Ti:sapphire laser for nonlinear microscopy," *Appl. Phys. B* **107**, 17-22 (2012).
<https://doi.org/10.1007/s00340-011-4830-7>
- [7] L. Fésűs, Á. Krolopp, G. Molnár, N. Kiss, G. Tamás, and R. Szipőcs, "A 20 MHz, sub ps, Tunable Ti:sapphire Laser System for Real Time, Stain Free, High Contrast Histology of the Skin," in *Biophotonics Congress: Biomedical Optics 2020 (Translational, Microscopy, OCT, OTS, BRAIN)*, OSA Technical Digest (Optical Society of America, 2020), paper MTh3A.4. (2020).
<https://doi.org/10.1364/MICROSCOPY.2020.MTh3A.4>

FOTODISSZOCIÁCIÓ SZABÁLYOZÁSA THZ PULZUSSAL INDUKÁLT STARK EFFEKTUSSAL

Tóth A.¹, Csehi A.², Halász G. J.³, és Vibók Á.^{2,1}

¹ELI-ALPS, ELI-HU Non-Profit Ltd, H-6720 Szeged, Dugonics tér 13, Magyarország

²Elméleti Fizikai Tanszék, Debreceni Egyetem, H-4010 Debrecen, PO Box 5, Magyarország

³Információ Technológiai Tanszék, Debreceni Egyetem, H-4010 Debrecen, PO Box 12, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.34>

1. Bevezetés

A lézertechnológia elmúlt évtizedekben történt folyamatos fejlődésének köszönhetően napjainkra femtoszekundumos vagy akár néhány attoszekundumos lézerpulzusok is a kutatók rendelkezésére állnak. Ezek a példátlan időfelbontást biztosító pulzusok elengedhetetlen kellékei a hasonló időskálán zajló fizikai folyamatok vizsgálatának. Ennek köszönhetően, a lézer-anyag kölcsönhatás tanulmányozása az egyik leggyorsabban fejlődő kutatási területté vált, amely számos új jelenség - mint például a magas felharmonikusok keltése vagy fotoionizáció és fragmentáció - felfedezéséhez vezetett.

Az atomok és molekulák belsejében lezajló dinamikai folyamatok megértése mellett egyre nagyobb hangsúlyt kap ezek ellenőrzött irányítása [1, 2]. Erre az egyik legnépszerűbb stratégia a dinamikus Stark effektus (DSE) használata. Az alkalmazott lézerfény frekvenciája szerint ez lehet rezonáns vagy nem-rezonáns. Az első esetben, molekulákra alkalmazva, az erős lézersugárzás képes csatolni két elektronállapotot a molekula átmeneti dipólusmomentumán keresztül. Ennek hatására elfajulások, úgynevezett kónikus kereszteződések jönnek létre, amelyeken keresztül lezajló nemadiabátikus folyamatok erőteljesen befolyásolják a molekula dinamikai, illetve spektroszkópiai tulajdonságait. A másik, nem-rezonáns esetben a lézerfény továbbra is képes jelentős dinamikai hatásokat kifejteni a potenciálisenergia-felületeknek (potential energy surface, PES) permanens dipólusmomentumon keresztül történő formálásával. Ezt a hatást átfogóan tanulmányozták az irodalomban, mivel egy általános eszközként szolgál atomi és molekuláris folyamatok kvantumszabályozására [3, 4]. A vizsgált rendszer tekintetében a dinamikus Stark effektus dipólus vagy Raman közelítésben írható le. A köztük lévő különbség abban nyilvánul meg, hogy míg a dipólus esetben a kölcsönhatás a lézer pillanatnyi elektromos terét követi, addig a Raman esetben a pulzus burkolóját.

A közelmúltban néhány kutatócsoport figyelme a terahertzes pulzusok felé irányult. Fleischer és munkatársai a molekulák egyciklusú THz pulzusok hatására történő irányítottságát vizsgálták [5]. Ugyanez a csoport tanulmányozta a térmentes forgási mozgás lecsengését a terahertzes mező által indukált molekuláris orientáción keresztül [6]. Kurosaki és munkatársai egy módszert javasoltak hullámcsomagok időbeli szétválasztására. Lineárisan poláros egyciklusú THz pulzusok segítségével sikerült szétválasztaniuk a ¹³³CsI és ¹³⁵CsI izotopológok keverékét [7]. Došlić egyciklusnál rövidebb THz impulzusokat használt elektronállapot függő populációtranszfer elérésére az ACAC molekulában [8].

A jelen munka a fent említett két irány ötvözése, azaz a molekulák viselkedését irányító Stark hatást terahertzes pulzusokkal keltjük. A hullámcsomagok dinamikájának részletes vizsgálatával igyekszünk meghatározni a rendszert befolyásoló fő mechanizmusokat és ezek nyomait olyan fizikai

mennyiségekben mint a fotofragmentumok szögeloszlása és kinetikus energia spektruma. Mindezt a lítium-fluorid (LiF) molekula példáján keresztül tesszük.

2. Módszer

A lítium-fluorid molekula az alkáli-halogenidek csoportjába tartozik. Ezek közös jellemzője a legalacsonyabban fekvő két $1^1\Sigma^+$ elektronállapotuk közötti elkerült kereszteződés (avoided crossing, a továbbiakban AC), ami miatt a nemadiabatikus folyamatok tanulmányozásának népszerű kísérleti alanyaivá váltak. Korábbi eredményeinket alapul véve [9], a LiF molekulát, mint egy háromállapotú rendszert modellezzük, ahol az előbb említett $1^1\Sigma^+$ és $2^1\Sigma^+$ állapotok mellett az $1^1\Pi$ elektronállapotot is figyelembe vesszük. A továbbiakban Σ_1 , Σ_2 és Π_1 néven hivatkozunk rájuk. A nekik megfelelő potenciálisenergia-görbék az 1.(a) ábrán láthatók, a Σ állapotokat az AC-nál összekötő csatolási taggal $[\tau(R) = \langle \varphi_{\Sigma_1} | \frac{\partial}{\partial R} \varphi_{\Sigma_2} \rangle]$ együtt. Az ábra további paneljei a molekula (b) állandó $[\mu_i(R) = -\langle \varphi_i | \sum_k r_k | \varphi_i \rangle]$ és (c) átmeneti $[\mu_{ij}(R) = -\langle \varphi_i | \sum_k r_k | \varphi_j \rangle]$ dipólmomentumait (TDM) mutatja be. Fontos jellemzője az átmeneti dipólmomentumoknak, hogy míg a Σ_1 - Σ_2 átmenetért felelős $\vec{\mu}_{\Sigma_1\Sigma_2}$ párhuzamos a molekulatengellyel, addig a Π_1 állapotot csatolóak merőlegesek erre az irányra.

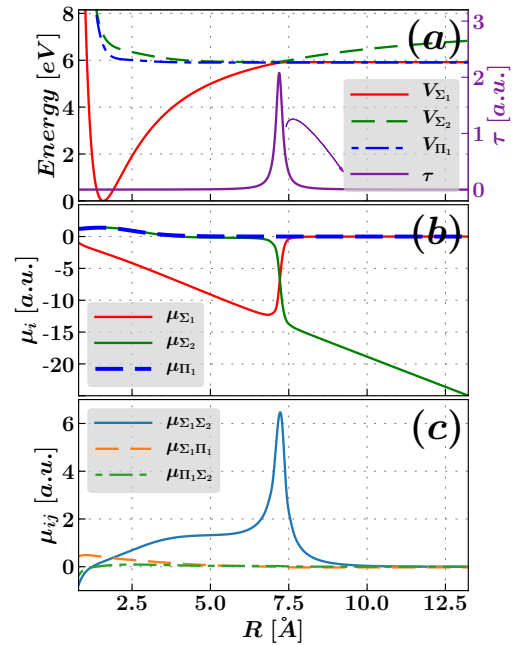
Előző munkáinkban [9] azt is megmutattuk, hogy a molekuladinamika valósághű leírásához a szimulációkban figyelembe kell vennünk a forgási szabadsági fokot. A terahertzes sugárzás köztudottan erős forgató hatását figyelembe véve, a jelen esetben ez hatványozottan érvényes. Ennek megfelelően a rendszer időfüggő Hamilton operátora a

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} T & 0 & K \\ 0 & T & 0 \\ -K & 0 & T \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} V_{\Sigma_1} - \mu_{\Sigma_1} \cos(\theta) E(t) & -\mu_{\Sigma_1\Pi_1} \sin(\theta) E(t) & -\mu_{\Sigma_1\Sigma_2} \cos(\theta) E(t) \\ -\mu_{\Sigma_1\Pi_1} \sin(\theta) E(t) & V_{\Pi_1} - \mu_{\Pi_1} \cos(\theta) E(t) & -\mu_{\Pi_1\Sigma_2} \sin(\theta) E(t) \\ -\mu_{\Sigma_1\Sigma_2} \cos(\theta) E(t) & -\mu_{\Pi_1\Sigma_2} \sin(\theta) E(t) & V_{\Sigma_2} - \mu_{\Sigma_2} \cos(\theta) E(t) \end{pmatrix} \quad (1)$$

alakban írható, ahol T a forgó-rezgő molekula kinetikusenergia operátora, K pedig az 1.(a) ábrán bemutatott $\tau(R)$ csatolási tagból származtatott nemadiabatikus csatolási operátor [10].

A Hamilton operátor kifejezésében $E(t)$ a lézertér pillanatnyi elektromos terének értékét jelöli. Számításaink során két lineárisan polarizált (azonos irányba mutató) pulzust használtunk. Az első egy 20 fs hosszú (félértékszélesség) pumpa pulzus, melynek fotonenergiája $\hbar\omega_p = 6.94$ eV, míg intenzitása $I_p = 5 \times 10^{12}$ W/cm² volt. Ez gerjesztette a kezdetben alapállapotban lévő molekulát, beindítva ezzel a fotodisszociációs folyamatot. A második, a kontroll pulzus, egy $\hbar\omega_c = 0.037$ eV energiájú és $I_c = 3.16 \times 10^{13}$ W/cm² intenzitású egyciklusú (félértékszélesség) terahertzes pulzus.

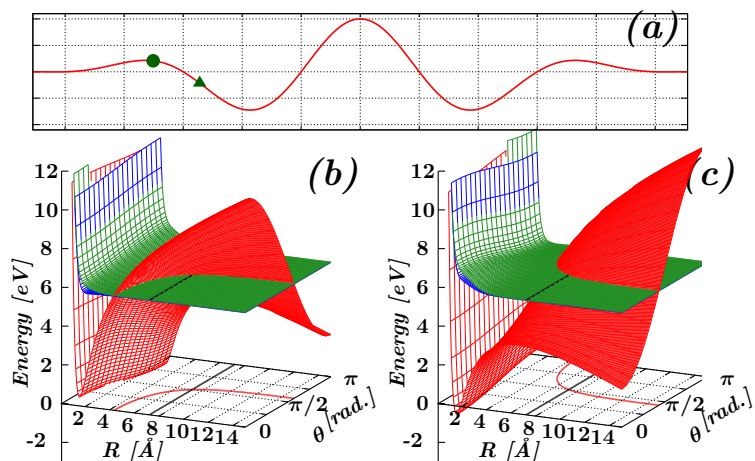
A maghullámfüggvény időfejlődését leíró Schrödinger-egyenletet az MCTDH (multi configuration time-dependent Hartree) módszer segítségével oldottuk meg. Ez egy hatékony eljárás, amely akár 25-30 módust is képes leírni. Esetünkben kétdimenziós számolásokra került sor az R rezgési és θ forgási (molekulatengely és a lézer polarizációs iránya által bezárt szög) szabadsági fokok által meghatározott konfigurációs térben. A kapott hullámcsomagokból aztán kiszámoltuk az egyes elektronállapotok populációját, illetve a fragmentálódó részecskék szögeloszlását és kinetikusenergia spektrumát.



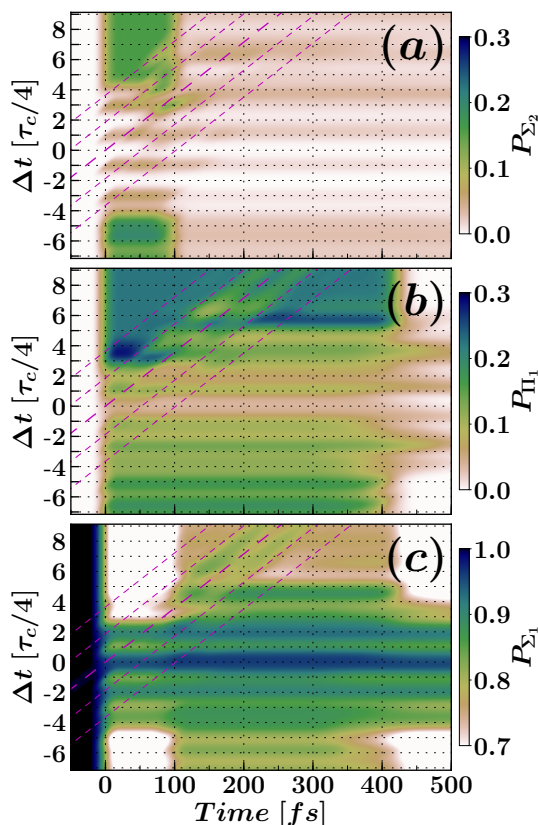
1. ábra. (a) LiF molekula legalacsonyabb három adiabatikus potenciálisenergia görbéje és a Σ állapotok közötti nemadiabatikus csatolási tag. (b) A három állapot permanens dipólmomentuma. (c) A különböző állapotok közötti átmeneti dipólmomentum.

3. Eredmények

Az irodalomban található munkák túlnyomó része a nem-rezonáns dinamikus Stark effektust (NRDSE) alkalmazza a Raman közelítésben. A kölcsönhatás következtében módosul a potenciálisenergia-felületek alakja, így az AC kereszteződésen áthaladó hullámcsomagok sebessége is, ami a Landau-Zener képlet szerint a fotofragmentumok elektronállapot szerinti arányának módosulásához vezet. A jelen munka alapvető különbsége, hogy a LiF molekula elektronállapotai dipólus-csatoltak, ami azt jelenti, hogy az elsőrendű DSE érvényes. Ennek következtében a kölcsönhatás a pillanatnyi elektromos teret követi. Emellett, a kontroll pulzus intenzitása viszonylag nagy, ami a potenciálisenergia-felületek jelentős torzulásához vezet. Ezt a 2. ábra szemlélteti, amelyen a (b) és (c) panelek a számolások során használt terahertzes lézer pulzus ((a) panel)



2. ábra. (a) A cikkben használt THz lézerpulsus alakja. Fénnyel indukált potenciálisenergia-felületek (LIPs) két különböző, az (a) panelen jelölt, időpillanatban: (b) zöld kör, (c) zöld háromszög.



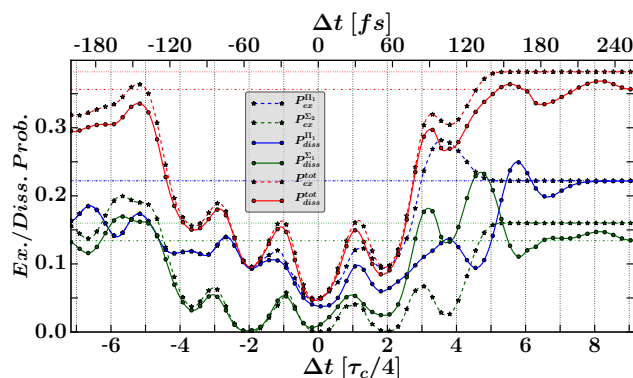
3. ábra. Az elektronállapotok populációjának fejlődése Δt függvényében. Ferde lila vonalak jelzik az időpillanatokat, amikor a kontroll pulzus elektromos terének minimuma/maximuma van.

két időpillanathoz tartozó fénnyel indukált potenciális energia-felületeit (light-induced potentials, LIPs) mutatja be. Ezeket a Hamilton operátor 1. képletében szereplő potenciálisenergia-mátrixnak (második tag) a diagonalizációjával kapjuk.

A dinamikus Stark hatást általában a pumpa és a kontroll pulzus közötti időeltolás függvényében vizsgálják. Mi is ezt a hagyományt követtük, és első lépésben a három elektronállapot populációjának időfejlődését vizsgáltuk a kontroll pulzus Δt késleltetésének függvényében. Számolásainkat véletlenszerű térbeli orientációjú molekulákra végeztük, amelyek kezdeti állapotát a Σ_1 elektronállapot alap forgási $J = 0$ és alap vibrációs $\nu = 0$ sajátállapota képezte. A kapott eredményeket a 3. ábra mutatja be, ahol az időeltolás a kontroll pulzus periódusidejének ($\tau_c = 111.77$ fs) egységeiben van kifejezve. Az ábra alapján nyilvánvaló, hogy a kontroll pulzusnak markáns hatása van ezekre a populációkra. A legszembeűnőbb jellemző a pumpa folyamat elnyomása, amikor a két pulzus időben fedi egymást. A gerjesztett populációk azonban nem csak lecsökkennek, hanem a terahertzes pulzus periódusát követő modulációkat mutatnak az időeltolás függvényében. Érdekes megjegyezni, hogy ezek a modulációk akkor is jelentkeznek, ha a Stark pulzus megelőzi a pumpát. A másik fontos jelenség a dinamika megkezdése után történő populációtranszfer a kontroll pulzus szélsőértékeinél, ami hatással van a Σ_1/Π_1 csatornákon történő disszociáció

arányára.

A fenti észrevételeket áttekinthetőbb formában mutatja a 4. ábra. Szaggatott vonalak csillagokkal jelölik a gerjesztési-, míg folytonos vonalak körökkel a disszociációs valószínűséget. Zöld és kék szín jelzi a Σ_2 illetve Π_1 elektronállapotokra vonatkozó mennyiségeket, míg a piros színű vonalak ezek összegeit. Azonos színű kódú pontozott és szaggatott-pontozott vízszintes vonalak mutatják a rendszer gerjesztési és disszociációs valószínűségét a Stark pulzus hiányában. Látható, hogy megfelelően hosszú időeltolás esetén ($\sim 5\tau_c/4$) a gerjesztett populációk a kontroll-mentes értékeikhez konvergálnak. Kisebbségi kérés esetén, amikor a kontroll megelőzi a pumpa pulzust a Π_1 -re gerjesztett populáció alulmúlja, míg a Σ_2 meghaladja a kontroll-mentes értékét. A közbeeső tartományban, amikor a két pulzus egyidejűleg van jelen, a gerjesztés lényegesen lecsökken, és csak rövid ideig jöhet létre a kontroll pulzus nulla-pontjai körül.

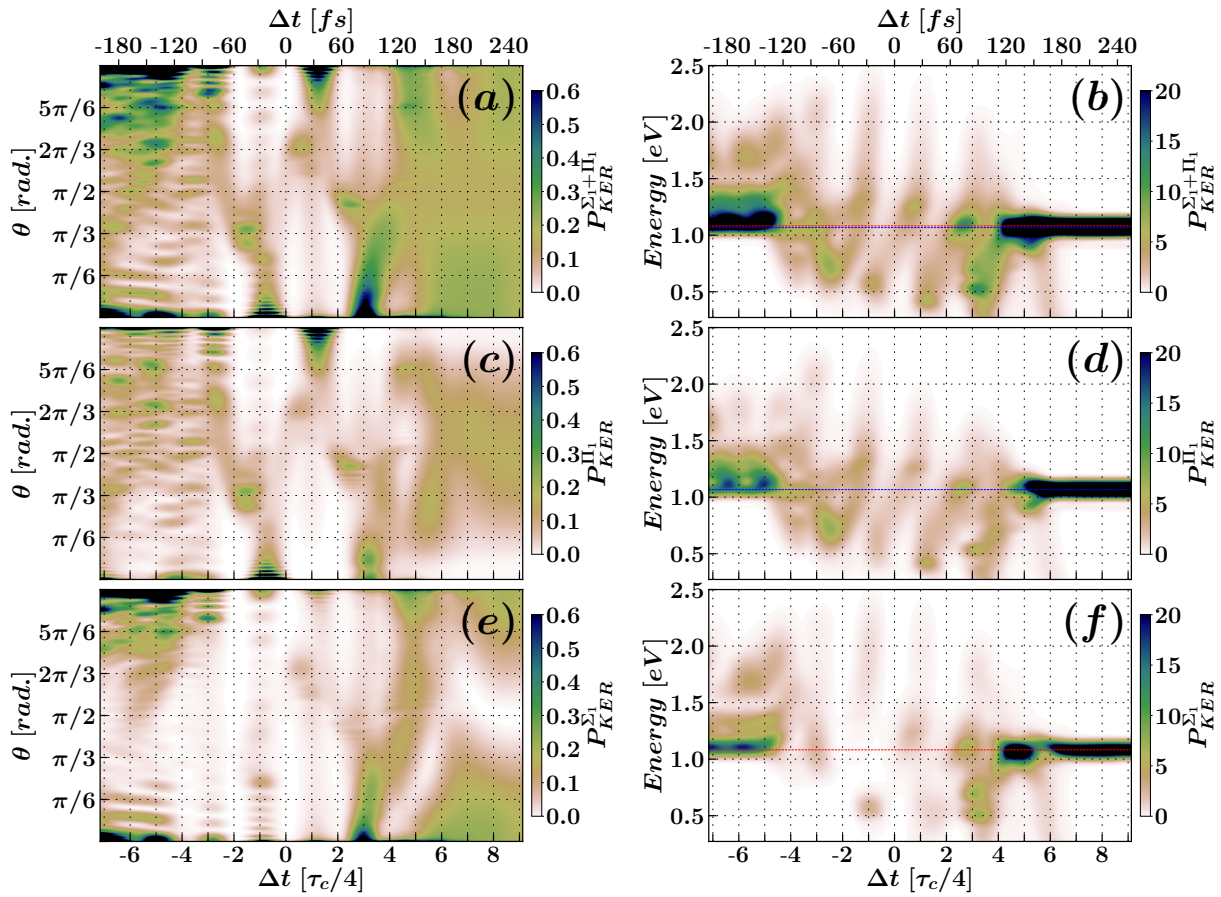


4. ábra. Kék és zöld szaggatott vonalak jelzik a Π_1 és Σ_2 elektronállapotokra gerjesztett populációt, míg a kék és zöld folytonos vonalak a Π_1 és Σ_1 állapotokon történő disszociáció valószínűségét. A piros vonalak a gerjesztett és disszociáló populációk összegét jelölik.

A rendszer viselkedésének oka, hogy a terahertzes sugárzás bár nem képes átmeneteket előidézni az elektronállapotok között, rotációs és vibrációs gerjesztéseket vált ki. Ennek következtében a Σ_1 állapotban egy forgási hullámcsomag jön létre, ami a gerjesztett populációk modulációját okozza negatív Δt értékeknél, mivel a pumpa pulzus már nem az eredeti izotrop eloszlást találja. Továbbá, a hullámcsomag különböző komponenseinek kölcsönhatása egy interferenciamintázat megjelenéséhez vezet, ami a fotofragmentumok szögeloszlásában is megmutatkozik. Ezeket a szögeloszlásokat a 5. ábra bal oszlopa mutatja. Megfigyelhető, hogy abban az esetben ha a kontroll pulzus megelőzi a pumpát, a disszociáció főként a lézer polarizációs iránya mentén történik, és túlnyomórészt a Σ_1 állapotban. Ez annak köszönhető, hogy a THz pulzus az eredetileg véletlenszerűen orientált molekulákat a saját polarizációs irányába rendezi.

A két pulzus időbeli átfedése alatt tapasztalt pumpálási hatékonyság csökkenés a fénnel indukált potenciálisenergia-felületek segítségével érthető meg. Amint azt láttuk, a terahertzes pulzus a rendszer forgási gerjesztését idézi elő. A LIPs képen ez a potenciálisenergia-felületek θ koordináta menti deformációjában nyilvánul meg: adott magtávolságon a $\mu_i \cos(\theta) E(t)$ kölcsönhatási tag által a felületek megemelkednek vagy lesüllyednek a térmentes helyzetükhöz képest, azaz a $\theta = \{0, \pi\}$ irányokba periodikusan potenciálgödrök jönnek létre. Emiatt az izotrop kezdeti eloszlás ezekbe a potenciálgödrökbe koncentrálódik. A másik fontos tényező, hogy a gerjesztett állapotok állandó dipólusmomentumai ellenkező előjelűek a Franck-Condon régióban mint az alapállapoté, így ellenkező irányba mozognak el. Ennek következtében amikor az alapállapot hullámcsomag a lézerrel keltett potenciálgödörben összpontosul, az elektronállapotok közötti energiakülönbség meghaladja a pumpa pulzus energiáját, és a populáció transzfer nem jön létre. Erre az átvitelre csak rövid ideig van lehetőség a kontroll tér nullpontjai körül.

A Π_1 állapot viselkedése különösen érdekes. A pumpa energia a Σ_1 - Σ_2 átmenetre volt hangolva, így a Σ_1 - Π_1 rezonanciafeltétel a θ koordináta mentén változik a felületek kontroll pulzus által előidézett lengése során. Ez megfigyelhető a fragmentumok szögeloszlásában is a $\Delta t \in [-3\tau_c, 5\tau_c]$ intervallumban. A Π_1 állapothoz tartozó átmeneti dipólusmomentumok merőlegesek a molekulatengelyre, így a csatolás a felületek azon részén a legerősebb, ahol a kontroll tér általi torzítás a leggyengébb. Mivel a Π_1 állapot alacsonyabban fekszik mint a Σ_2 , a rezonanciafeltétel a kontroll pulzus előjelváltása előtt teljesül, amikor az alapállapot hullámfüggvény még a lézer polarizációs irányába összpontosul. Emiatt a populáció átvitel is itt történik a gyengébb csatolás ellenére is. Ráadásul, a tér előjelváltása



5. ábra. Disszociáló fragmentumok szögeloszlása és kinetikus energia eloszlása: (c), (d) Π_1 állapot; (e), (f) Σ_1 állapot; (a), (b) a két disszociációs csatorna összege.

után a gerjesztett állapotokon alakulnak ki potenciálgödrök, ami a Π_1 állapotra került hullámcsomagot a $\theta = \{0, \pi\}$ irányba forgatja, előidézve ezzel a szögeloszlásban látható interferenciamintázatot. Ha a kontroll pulzust a rendszer gerjesztése után alkalmazzuk, de mielőtt a hullámcsomagok elérnék az AC kereszteződést, a fentebb említett populáció transzfer nyomait látjuk a szögeloszlásokban: a polarizációs irányra merőleges fragmentumok jelennek meg a Σ_1 csatornán, míg a disszociációs valószínűség lecsökken a Π_1 állapotban. Nagyobb időeltolások esetén a szögeloszlások a kontroll-mentes értékeikhez konvergálnak.

A kontroll pulzus hatását a szögeloszlások mellett a disszociáló fragmentumok kinetikus energiájának spektrumában is megtaláljuk. Ezeket az 5. ábra jobb oszlopa mutatja be. A piros és kék vízszintes vonalak a Σ_1 és Π_1 állapotokhoz tartozó spektrumok kontroll-mentes esetben számolt csúcserőértékét jelölik. Negatív időeltolások esetén ezeknél magasabb energiákat is találunk, ami a molekula rotációs-vibrációs gerjesztésére utal. Ha a kontroll pulzus jelen van a rendszer gerjesztése és a hullámcsomagok AC-n való áthaladása között, a spektrumok szétkénődnek. Ennek két oka van.

Először is, az energia-felületeknek a Stark hatás miatti lengése a fragmentumok potenciális energiájának módosulását okozza, ami végül a kinetikusenergia spektrumban nyilvánul meg. Ennek a változásnak a mértéke függ a kontroll pulzus fázisától, és attól, hogy a gerjesztett felület melyik tartományra került populáció.

A másik szintén a PES dinamikus változásának következménye. Korábbi munkák [11] rámutattak, hogy a Stark hatás következtében eltorzult energiafelületek a Σ_1 és Σ_2 állapotok közti nemadiabatikus csatolás helyének időfüggését is eredményezik. Ezt a 2. ábra is illusztrálja, ahol az R - θ síkban lévő fekete vonalak a AC kereszteződés helyét jelöli kontroll-mentes esetben, míg a piros görbék a fényel indukált felületek kereszteződéseit mutatják adott időpillanatokban. Háromállapotú leírásunkban a Σ_1 és Π_1 állapotok között is kialakul egy kereszteződés, amit a másikhoz viszonyított közelsége miatt

az ábrán nem tüntettünk fel. Amikor ezek a kereszteződések kisebb magtávolságok felé mozdulnak, a disszociáló hullámcsomag útjába kerülnek, és populációtranszfer történik. Ez úgy is tekinthető, mintha a hullámcsomag egy potenciálgáttal találkozna, aminek következtében veszít a kinetikus energiájából. Ennek a folyamatnak a nyoma a 4. ábrán bemutatott elektronállapot populációkban a legszembetűnőbb. Miután a kereszteződések mozgásának iránya megváltozik, ismét populációátvitelre kerül sor. Mivel a gerjesztett állapotok közül a Σ_2 fekszik magasabban, és ennek a $\mu_{\Sigma_1\Sigma_2}$ átmeneti dipólmomentuma erősebb mint $\mu_{\Sigma_1\Pi_1}$, így az előzőleg a Σ_1 állapotra került hullámcsomag jelentős része a Σ_2 -re jut. Ennélfogva, a kontroll pulzus egyirányúan módosítja a két disszociációs csatorna arányát, a Σ_1 -et részesítve előnyben.

4. Összefoglalás

Ebben a munkában egy terahertzes pulzus lítium-fluorid molekula fotodisszociációjára gyakorolt hatását vizsgáltuk. A bemutatott eredmények alapján a legfontosabb következmény a magasabb elektronállapotok gerjesztési hatékonyságának csökkenése. Ennek oka, hogy a kontroll pulzus hatására módosult potenciálisenergia-felületeket a pumpa pulzus már nem képes rezonánsan csatolni. Ez szakaszos pumpáláshoz vezet a kontroll tér nullpontjai körül. A felületek Stark fluktuációja a molekulák térbeli orientációjához, illetve a felületek közti dinamikusán változó kereszteződésekhez vezet. A disszociáló hullámcsomag ez utóbbiakkal való találkozása populációtranszfert eredményez, ami képes jelentősen módosítani a Σ_1/Π_1 fragmentációs csatornák valószínűségi arányát.

Köszönetnyilvánítás

A kutatást az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosítójú, EU társfinanszírozású projekt támogatta. Az ELI-ALPS projekt (GINOP-2.3.6-15.-2015-00001) az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásával valósul meg.

Irodalom

- [1] P. W. Brumer és M. Shapiro, Principles of the Quantum Control of Molecular Processes (John Wiley & Sons, 2003)
- [2] G. A. Worth és G. W. Richings, Annu. Rep. Prog. Chem. Sect. C: Phys. Chem. **109**, 113 (2013)
<https://doi.org/10.1039/C3PC90003G>
- [3] B. J. Sussman, D. Townsed, M. Y. Ivanov, és A. Stolow, Science **314**, 278 (2006)
<https://doi.org/10.1126/science.1132289>
- [4] D. Townsed, B. J. Sussman, és A. Stolow, J. Phys. Chem. A **115**, 357 (2011)
<https://doi.org/10.1021/jp109095d>
- [5] S. Fleischer, Y. Zhou, R. W. Field, és K. A. Nelson, Phys. Rev. Lett. **107**, 163603 (2011)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.163603>
- [6] R. Damari, D. Rosenberg, és S. Fleischer, Phys. Rev. Lett. **119**, 033002 (2017)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.033002>
- [7] Y. Kurosaki, H. Akagi, és K. Yokoyama, Phys. Rev. A **90** 043407 (2014)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.043407>

- [8] N. Došlić, J. Phys. Chem. A **110**, 12400 (2006)
<https://doi.org/10.1021/jp064363i>
- [9] A. Tóth, A. Csehi, G. J. Halász, és Á. Vibók, Phys. Rev. A **99** 043424 (2019)
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.043424>
- [10] A. Hofmann és R. de Vivie-Riedle, Chem. Phys. Lett. **346** 299 (2001)
[https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(01\)00922-8](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(01)00922-8)
- [11] S. Scheit, Y. Arasaki, és K. Takatsuka, J. Chem. Phys. **140** 244115 (2014)
<https://doi.org/10.1063/1.4884784>

ÚJ GENERÁCIÓS TERAHERTZES IMPULZUS FORRÁSOK

Tóth György^{1,2}, Pálfalvi László¹, Tibai Zoltán¹, Krizsán Gergő^{1,2}, Fülöp József András^{1,2},
Almási Gábor^{1,2}, Hebling János^{1,2,3}

¹PTE-TTK Fizikai Intézet, 7624 Pécs, Ifjúság u. 6, Magyarország

²Szentágothai János Kutatóközpont, 7624 Pécs, Ifjúság u. 20, Magyarország

³MTA-PTE Nagyintenzitású Terahertzes Kutatócsoport, 7624 Pécs, Ifjúság u. 6, Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.35>

1. Bevezetés

Nagy energiájú terahertzes (THz-es) impulzusok előállításának elterjedt módja a lítium niobát (LN) kristályban történő döntött impulzusfrontú gerjesztés [1]. A technikát széles körben alkalmazzák olyan területeken, ahol egyciklusú, nagy térerősségű THz-es impulzusokra van szükség [2]. Közel tíz éve felvetődött annak a lehetősége, hogy extrém nagy térerősségek esetén a THz-es impulzusok alkalmasak lehetnek töltött részecskék manipulálására, gyorsítására is [3]. Ezen elképzelésre alapozva megszületett az első impulzus üzemű THz-es elektrongyorsító [4]. Számos tanulmány mutatott rá, hogy amennyiben a jelenleg előállított impulzusenergiáknál nagyobb energiájú THz-es impulzusokat tudnánk előállítani, úgy egyrészt jóval hatékonyabb gyorsítást érhetnénk el [5], másrészt új területek nyílhatnak meg a THz-es impulzusok alkalmazása számára [6-8].

A döntött impulzusfrontú elrendezés azonban nem alkalmas 1 mJ-nál jelentősen nagyobb energiájú THz-es impulzusok létrehozására [9-10]. Ezt a korlátot három fő okra vezethetjük vissza [10-11]: 1) a keltésre használt kristály nagy ékszögű prizma, így az THz-es nyaláb keresztiránya mentén a sugárzás különböző utakat tesz meg a kristályban. Ennek eredményeként a THz-es sugárzás térerősséglefutása nem lesz homogén a nyaláb keresztmetszete mentén. 2) A döntött impulzusfront előállítása jelentős szögdiszperzióval jár, mely rövid pumpáló impulzusok esetén az impulzusalak gyors megváltozásához vezet. Ez a hatás jelentősen redukálja a keltési hatásfokot. 3) A döntött impulzus kristályba való leképzéséből eredő leképzési hibák is jelentősen korlátozzák az alkalmazható pumpa nyalábméretét.

Ezen limitáló tényezőket igyekezett feloldani a közelmúltban számos új elképzelés [13-17], melyek közül a legpontosabb számítások alapján is [10] a Pécsi Tudományegyetemen tett javaslatoknak [14-17] valóban meghatározó szerepe lehet a nagy intenzitású THz-es impulzusok előállításának területén.

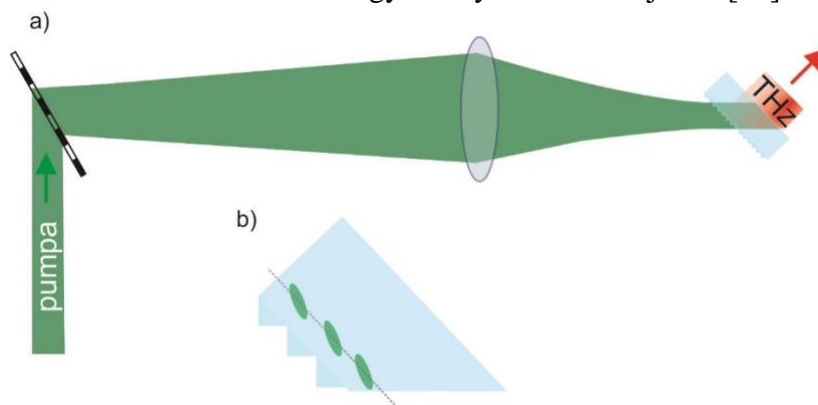
2. Eredmények

Három új típusú THz-es forrást javasoltunk a közelmúltban [14-16], melyek közül eddig egynek a működését demonstráltuk [18].

a.) NLES - leképzéssel

Az első javaslatunkat az 1. ábra mutatja be: a LN kristály rács felőli fala mikrostrukturált szerkezetű (tipikusan 50-70 μm -es lépcsők), és a LN döntve van olyan mértékben, amilyen mértékű impulzusfront döntésre van szükség a LN kristály belsejében a sebességillesztés megvalósítása érdekében [1,14]. A transzmissziós rács - lencse rendszer arra szolgál, hogy ugyanilyen mértékű impulzusfront dőléssel rendelkezzen a pumpáló impulzus mielőtt belép a LN kristályba. Így teljes mértékben megszüntettünk minden olyan problémát, melyet a nagy ékszögű prizma alakú kristály használata eredményezett, hiszen az alkalmazott kristály ezzel a megoldással sík-párhuzamos lehet.

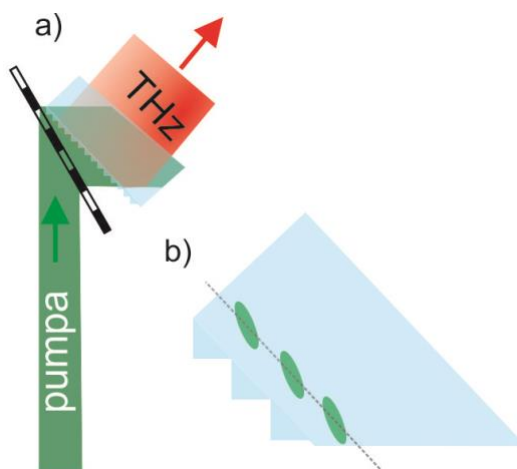
Ennél az elrendezésnél az optikai rács - lencse rendszernek jelentősen kisebb döntési szöggel rendelkező impulzusfrontot kell csak létrehoznia, mint a hagyományos elrendezés esetén. (A szükséges dőlési szögek tangenseinek aránya a LN csoporttörésmutatójával egyenlő.) Ez jelentősen megnövelt THz keltési hosszát eredményez. Ugyanakkor a LN kristályban létrehozott impulzusfront dőlése nem folytonos, hanem szegmentált (lásd 1. b ábra). Az elrendezéssel a THz-es energia tökéletesen skálázható a pumpa nyalábméretével egészen a leképzési korlátok megjelenéséig. Ez 200 fs-os impulzushossz esetén 2 cm-nél is nagyobb nyalábméretöt jelent [14].



1. ábra. „NLES – leképzéssel” elrendezés (a) és a szegmentált döntött impulzusfront a kristályban (b)

b.) NLES - leképzés nélkül

Rámutattunk, hogy lehetőség van az NLES használatára abban az esetben is, ha elhagyjuk a leképző elemet [15] (2. ábra), ezzel megszüntetve a leképzésből eredő korlátozó tényezőket. A nagy diffrakciós hatásfok elérése érdekében elsősorban olyan geometriákat vizsgáltunk, amikor a pumpa nyaláb Littrow-szögben esik a rácsra. Ebben az esetben azonban a szükséges impulzusfront-döntés kialakításához le kell mondanunk arról, hogy a rács és a kristály oldalai mind párhuzamosak legyenek. Számításaink alapján Littrow-szögű elrendezés esetén jó hatásfokkal, jó minőségű THz-es nyaláb állítható elő 1030 nm-es pumpálási hullámhosszon 1570 vonal/mm karcolatsűrűségű rácsot használva. Ebben az esetben a pumpa 54° -os szöget zár be a diffrakciós rács normálisával, a rács és a kristály rács felőli felülete párhuzamos, a kristály hátlapja azonban 9° -os szöget zár be ezzel az előlappal.



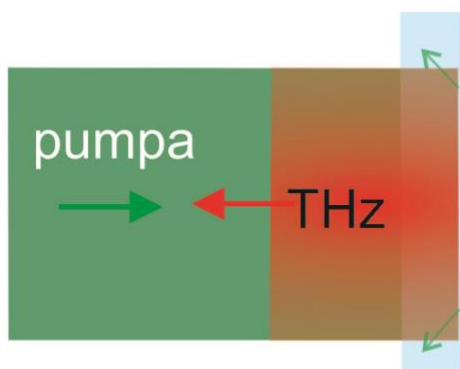
2. ábra „NLES – leképzés nélkül” elrendezés (a) és a szegmentált döntött impulzusfront a kristályban

Az elrendezés teljes mértékben megszünteti a leképzési hibákat, de csak redukálja (igen erős mértékben) a prizma alakból eredő problémákat. Amennyiben a diffrakciós rácsot nem Littrow-szögben használjuk, úgy megoldható, hogy a rács és a kristály oldalai is párhuzamosak legyenek egymással. Ilyen esetben a pumpa merőlegesen esik a 870 vonal/mm-es karcolatsűrűségű rácsra, a Littrow-szögtől való eltérés $26,5^\circ$ -, mely közel 70%-os diffrakciós veszteséget okoz.

A két szélső helyzet között (Littrow szögű elrendezés, amikor a pumpa és a rács normálisa 54° -os szöget zár be egymással, illetve párhuzamos falú kristály párhuzamos rácsállással, amikor a pumpa merőlegesen esik a rácsra) számításaink alapján a legjobb kompromisszum, ha a Littrow-szögtől $\sim 10^\circ$ -al térünk el. Ez esetünkben 1360 vonal/mm-es karcolatsűrűségű rácsnál valósítható meg, melynek diffrakciós hatásfoka 80% körül van. A pumpa rácsra való beesésének szöge 35° , a kristály ékszöge $4,5^\circ$, mely jelentős nyalábminőség javulást és használható kristályfelület növelést tesz lehetővé [19]. Felvetődött térfogati holografikus rácsok használata is, mellyel jóval nagyobb hatásfokkal lehet elérni azt az esetet, amikor mind a kristály falai, mind a rács párhuzamosak.

c.) Reflexiós NLS

Az előzőektől eltérő koncepció a reflexiós NLS (Nonlinear Slab), mely egy, a hátoldalán reflexiós rácsként kialakított párhuzamos falú kristályból áll (3. ábra). A sebességillesztés itt a hagyományos döntött impulzusfrontú gerjesztéshez hasonlóan, egy rácsról történő diffrakciót követően alakul ki, de ezúttal ez a diffrakció nem a kristályon kívül, hanem a kristályban történik. A THz-keltés a hátoldaltól történő diffrakciót követően kezdődik.



3. ábra Reflexiós NLS elrendezés. A balra haladó THz-es impulzust a kristály hátoldalán diffraktálódott, döntött, már balra haladó pumpa impulzus alakítja ki.

Az elrendezés mind az ékszögből, mind a leképzésből eredő problémákat megszünteti, azonban a szögdiszperzió ugyanúgy megmarad, mind a hagyományos döntött impulzusfrontú elrendezés esetén. A keletkező THz-es nyaláb azonban kiváló minőségű lesz, a keltési hatásfok reális értéke 1-2% körül lehet [9]. Egyszerűbb számítások, melyek nem veszik figyelembe a keletkező THz-es impulzus pumpára való visszahatását, ennél lényegesen nagyobb hatásfokot jósolnak [19]. Az elrendezés rendkívülisége, hogy szemben a korábbi technikákkal, itt semmilyen elvi korlát nincs, ami a használható pumpáló folt méretét korlátozná. Megfelelően nagy kristály esetén tehát reflexiós NLS esetén a THz-es energia a pumpáló impulzus energiájával skálázható.

Mivel még nem bizonyított, hogy a kristály felületén optikai minőségű rácsot tudnak létrehozni, olyan megoldást is javasoltunk, ahol a téglatest alakú kristályhoz illesztő folyadékkal illesztettünk egy külső

reflexiós rácsot [17]. Ez a megoldás nagyban megkönnyítheti ezen típusú THz-forrás tömeggyártását is.

3. Összefoglalás

Az elmúlt bő három évben olyan új LN alapú THz-es forrásokat fejlesztettünk ki, melyek a döntött impulzusfrontú technikához hasonlóan mérőföldkövet jelenthetnek a nagy energiájú THz-es impulzusok előállításának a területén. A három különböző forrás különböző felhasználási lehetőségeket biztosít. Míg a leképzéses NLES-el néhány mJ-os, tökéletes minőségű, egyciklusú THz-es nyalábokat lehet előállítani, addig a leképzés nélküli forrással (egy kismértékű nyalábminőség romlás mellett) jelentősen megnövelhető a THz-keltésre használt kristályfelület és ezzel együtt a keltett THz-es impulzus energiája. A reflexiós NLS esetén semmilyen korlátozó tényező nincs a pumpáló nyaláb keresztmetszetét tekintve, a THz-es impulzusok energiája a pumpáló lézer energiájával skálázható. A nyalábminőség tökéletes (a térerősség időbeli lefutása mindenhol azonos a nyaláb keresztmetszete mentén), ám egyciklusú impulzusokat csak hosszabb (~500-700 fs) pumpáló impulzusok esetén állíthatunk elő.

Köszönetnyilvánítás

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosító számú, Ultra-gyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben című projekt, az 125808 számú Terahertzes részecskegyorsítás című OTKA-pályázat, és a Bolyai János Kutatási Ösztöndíj (T. Gy.) támogatta.

Irodalom

- [1] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma and J. Kuhl, Opt. Express **10**, 1161-1166 (2002).
<https://doi.org/10.1364/OE.10.001161>
- [2] P. Sanén, M. Basini, S. Bonetti, J. Hebling, M. Krasilnikov, A. Y. Nikitin, G. Shamuilov, Z. Tibai, V. Zhaunerchyk, and V. Goryashko, Phys. Rep. **836-837**, 1-74 (2019).
<https://doi.org/10.1016/j.physrep.2019.09.002>
- [3] J. Hebling, J. A. Fülöp, M. I. Mechler, L. Pálfalvi, C. Tőke, and G. Almási, arXiv:1109.6852 (2011).
- [4] E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. D. Miller, and F. Kärtner, Nat. Commun. **6**, 8486 (2015).
<https://doi.org/10.1038/ncomms9486>
- [5] Z. Tibai, M. Unferdorben, Sz. Turnár, A. Sharma, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, J. Phys. B **51**, 134004 (2018).
<https://doi.org/10.1088/1361-6455/aac1f2>
- [6] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, Gy. Tóth, and J. Hebling, Phys. Rev. Spec. Top.-AC **17**, 031301 (2014).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.17.031301>
- [7] Gy. Tóth, Z. Tibai, A. Sharma, J. A. Fülöp, and J. Hebling, J. Opt. Soc. Am. B **35**, A103-A109 (2018).
<https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.00A103>

- [8] C. Hwayeong, Y. Hee-Jin, C. Moran, and S. Joo-Hiuk, *Biomed. Opt. Express* **10**, 4931-4941 (2019).
<https://doi.org/10.1364/BOE.10.004931>
- [9] K. Ravi, W. R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, and F. Kärtner, *Opt. Express* **22**, 20239-20251 (2014).
<https://doi.org/10.1364/OE.22.020239>
- [10] L. Wang, Gy. Tóth, J. Hebling, and F. Kärtner, *Laser Photonics Rev.* **14**, 2000021 (2020).
<https://doi.org/10.1002/lpor.202000021>
- [11] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **18**, 12311-12327 (2010).
<https://doi.org/10.1364/OE.18.012311>
- [12] B. K. Ofori-Okai, P. Sivarajah, W. R. Huang, K. A. Nelson, *Opt. Express* **24**, 5057-5068 (2016).
<https://doi.org/10.1364/OE.24.005057>
- [13] Y. Avetisyan, A. Makaryan, V. Tadevosyan, and N. Tonouchi, *J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves* **38**, 1439-1447 (2017).
<https://doi.org/10.1007/s10762-017-0429-3>
- [14] L. Pálfalvi, Gy. Tóth, L. Tokodi, Zs. Márton, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **25**, 29560-29573 (2017).
<https://doi.org/10.1364/OE.25.029560>
- [15] Gy. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Krizsán, N. H. Matlis, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **27**, 7762-7775 (2019).
<https://doi.org/10.1364/OE.27.007762>
- [16] Gy. Tóth, L. Pálfalvi, Z. Tibai, L. Tokodi, J. A. Fülöp, Zs. Márton, and J. Hebling, *Opt. Express* **27**, 30681-30691 (2019).
<https://doi.org/10.1364/OE.27.030681>
- [17] G. Krizsán, Z. Tibai, J. Hebling, L. Pálfalvi, G. Almási, and Gy. Tóth, *Opt. Express* **28**, 34320-34327 (2020).
<https://doi.org/10.1364/OE.405748>
- [18] P. S. Nugraha, G. Krizsán, Cs. Lombosi, L. Pálfalvi, Gy. Tóth, G. Almási, J. A. Fülöp, and J. Hebling, *Opt. Lett.* **44**, 1023-1026 (2019).
<https://doi.org/10.1364/OL.44.001023>
- [19] G. Illés, S. Balázs, M. Anna, Z. Tibai, L. Pálfalvi, G. Almási, J. Hebling, and Gy. Tóth, előkészítés alatt.

NAGY MÓDUSÁTMÉRŐJŰ FOTONIKUS KRISTÁLYSZÁL DISZPERZIÓS GÖRBÉINEK MEGHATÁROZÁSA ABLAKOLT FOURIER-TRANSZFORMÁCIÓS SPEKTRÁLIS INTERFEROMETRIÁVAL

Vukovity Krisztina¹, Grósz Tímea^{1,2}, Horváth Mercédesz^{1,3}, Kovács Attila Pál¹

¹SZTE TTIK Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, Dóm tér 9, Szeged, H-6720 Magyarország

²ELI-ALPS, ELI-HU Nonprofit Kft., Wolfgang Sandner utca 3., Szeged, H-6728 Magyarország

³Semilab Félvezető Fizikai Laboratórium Zrt., Prielle K. utca 2., Budapest, H-1117 Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.36>

1. Bevezetés

A fotonikus kristálysálak felfedezése [1] számos olyan alkalmazás megvalósítását tette lehetővé, amelyek speciális diszperzió-karakterisztikával bíró, alacsony veszteségű impulzustovábbítást igényelnek [2]. Habár a gyártási technológia napjainkig sokat fejlődött, előfordulhat, hogy az elkészült optikai szál geometriája, és ezáltal optikai tulajdonságai eltérnek a tervezettől. Ha a gyártás során például a szál szerkezetének hengeres szimmetriája sérül, akkor a szál kettősen törővé válik. Ekkor a szálba csatolt ultrarövid lézerimpulzus két, egymásra merőleges polarizációjú impulzusra bomlik fel, melyek különböző sebességgel terjednek, és ennek következtében időbeli késés alakul ki közöttük. Mivel a polarizációs iránytól függően a magasabb rendű diszperziós jellemzők is nagyon eltérők lehetnek [3], a szálból kilépő, egymásra merőleges polarizációjú impulzusok időbeli alakja is jelentősen különbözhet, ami az alkalmazások szempontjából kritikus lehet. A fentiekből látható, hogy egy optikai szálnak a használata előtt nagyon fontos, hogy mérésekkel meghatározzuk a diszperziós jellemzőit, és ne a tervezéskor megadott paramétereket vegyük alapul.

A spektrális interferometria egy széleskörben használt, nagy pontosságú, lineáris mérőmódszer, mely alkalmasnak bizonyult többek között optikai szálak diszperziójának mérésére is [3]. Nemrégiben megmutattuk, hogy a spektrális interferogramok kiértékelésére az ablakolt Fourier-transzformációval (windowed Fourier transform, WFT) meghatározott gerincvonal módszerrel [4] relatíve kis diszperziójú, légmagú fotonikus szálak diszperziója nagy pontossággal megmérhető [5]. Kérdés, hogy a nagyobb intenzitású lézerimpulzusok továbbítására kifejlesztett, nagy módusátmérőjű, tömör magú fotonikus szálak esetén is használható-e ez a módszer, amikor a szál csoportkésleltetés-diszperziója nagyságrenddel nagyobb a légmagú szálakhoz képest. Ismert, hogy a WFT módszernél használt ablakfüggvény szélessége meghatározza a WFT jel spektrális és időbeli felbontását is, melyek szorzata állandó. Ebből következik, hogy úgy kell megválasztani az ablakfüggvény szélességét, hogy megtaláljuk a megfelelő kompromisszumot a spektrális és az időbeli felbontóképesség értéke között.

Ebben a dolgozatban megvizsgáljuk egy nagy módusátmérőjű (large mode area, LMA), tömör magú fotonikus kristálysál esetében, hogy hogyan változik a WFT jel időbeli szélessége, és így a diszperziós együtthatók mérési pontossága az ablakfüggvény-szélességének változtatásával, figyelembe véve a szál csoportkésleltetés-diszperziójának hatását is.

2. Elméleti áttekintés

A spektrálisan bontott interferometriában a kísérleti elrendezés egy széles spektrumú fényforrással megvilágított kétsugaras interferométerből és a kimenetén elhelyezett spektrométerből áll. Az

interferométer egyik karjába kerül a vizsgálandó optikai elem, míg a másik, referenciaként szolgáló karban egy késleltető elem segítségével az interferométer két karja közötti időbeli késés állítható. Nem túl nagy τ időbeli késés esetén a két karból kilépő fénynyaláb interferenciájának következtében modulált spektrum jelenik meg a spektrométer kimenetén, melyet az

$$I(\omega) = I_r(\omega) + I_s(\omega) + 2\sqrt{I_r(\omega)I_s(\omega)} \cos(\Phi(\omega)), \quad (1)$$

összefüggés ír le, ahol $I_r(\omega)$ és $I_s(\omega)$ a referencia- és a tárgykarból érkező fénycsugár spektrális intenzitása, míg $\Phi(\omega)$ a két kar közötti spektrális fáziskülönbség:

$$\Phi(\omega) = \varphi(\omega) + \omega\tau, \quad (2)$$

ahol $\varphi(\omega)$ a minta spektrális fázisfüggvényét jelöli, $\omega\tau$ pedig az interferométer két karja közötti geometriai úthosszkülönbségből származó fázislag. A vizsgált optikai elem diszperzióját szokásosan a $\varphi(\omega)$ fázisfüggvénynek egy ω körfrekvencia körüli sorfejtésével kapott Taylor-sorának együtthatói jellemzik. Ha az optikai elemnek az impulzus időbeli alakjára gyakorolt hatását nézzük, akkor a csoportkésleltetés (GD , $d\varphi/d\omega$), a csoportkésleltetés-diszperzió (GDD , $d^2\varphi/d\omega^2$), illetve a további magasabb rendű diszperziós tagok, például a harmadrendű diszperzió (TOD) meghatározása is fontos. Vegyük észre, hogy

$$\frac{d\Phi}{d\omega} = \frac{d\varphi}{d\omega} + \tau, \quad (3)$$

azaz a minta csoportkésleltetés függvénye és az interferométer két karjai közötti Φ fázis ω szerinti deriválásával adódó függvény csak egy konstansban, az interferométer két karja közötti, általában ismeretlen értékű τ késleltetésben különbözik.

A spektrális interferogramok kiértékelésére, és ezáltal a spektrális fázis meghatározására a WFT gerincvonal keresésén alapuló algoritmust használjuk. A kiértékelés első lépéseként megszorozzuk az interferogramot a Gauss-görbe alakú ablakfüggvénnyel

$$g(\omega - \Omega) = \exp \left[- \left(\frac{\omega - \Omega}{\Delta\Omega} \right)^2 \right], \quad (4)$$

ahol Ω jelöli az ablakfüggvény középpontjához tartozó körfrekvenciát, míg $\Delta\Omega$ jellemzi az ablakfüggvény szélességét. Ezt követően az ablakolt interferogramon végrehajtunk egy inverz Fourier transzformációt (IFT):

$$W_l(\Omega, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega) g(\omega - \Omega) \exp(i\omega t) d\omega. \quad (5)$$

A kapott Gauss-os időbeli alakú jel maximuma a WFT jel gerincvonalának az adott Ω körfrekvenciánál lévő pontját adja meg. Változtatva az ablakfüggvények Ω központi körfrekvenciáját, ablakolt interferogramok sorozatát kapjuk, amelyeken szintén elvégezve az IFT-t, kirajzolódik a gerincvonal, ami a minta csoportkésleltetés görbéjével egyezik meg egy konstans tagot leszámítva. Az interferométer két karja közötti τ késleltetés változtatásával ez a gerincvonal az időtengely mentén mozog, de az alakja nem változik. A GDD, TOD és az esetleges magasabb rendű diszperziós együtthatókat megkapjuk, ha a gerincvonalra egy polinomot illesztünk. Optikai szálak

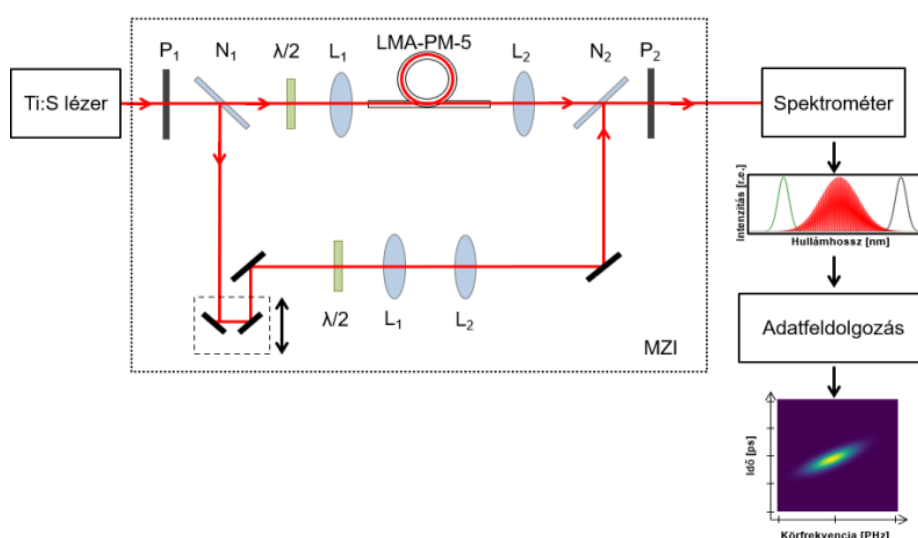
esetében a mért csoportkéseletetés görbének hullámhossz szerinti deriválásával megkaphatjuk a szálak diszperziójának jellemzésére gyakran használt D diszperziós görbét is:

$$D = -\frac{1}{L} \frac{dGD}{d\lambda}. \quad (6)$$

Az interferogramok WFT-n alapuló kiértékelésekor ügyelni kell arra, hogy az ablakfüggvény $\Delta\Omega$ szélességének megválasztásakor két feltételnek teljesülnie kell: Ω környezetében legyen az interferenciacsíkok amplitúdója közelítőleg állandó, és a spektrális fázisfüggvény jó közelítéssel lineáris legyen. Ha $\Delta\Omega$ -t nagyra választjuk, akkor a WFT jel időbeli szélessége elvileg kicsi lesz, azaz jó lesz az időbeli felbontásunk, feltéve, ha a lineáris közelítés nem sérül. Ha azonban a vizsgált szál diszperziója nagy, akkor már nem lesz érvényes ez a közelítés, így kisebb ablakszélességet kell választani, ami valamennyire viszont rontja az időbeli felbontást. Látható, hogy az optimális ablakszélesség mintánként eltérő lehet.

3. Kísérleti elrendezés

Az alkalmazott kísérleti elrendezés egy szélessávú titán-zafír lézerrel (6fs@ 800 nm, FWHM = 150 nm) megvilágított Mach-Zehnder interferométer, melynek kimenetén egy 0,2 nm spektrális felbontású spektrométer van (1. ábra). A vizsgált mikrostruktúrált optikai szál esetünkben egy 92 cm hosszú, tömör magú, nagy móduskeresztmetszetű fotonikus kristálysál (LMA-PM-5) volt. Annak biztosítása érdekében, hogy az interferométerben terjedő nyaláb lineárisan poláros legyen, az interferométer bemenete elé egy polarizátor került. A tárgykabban a szál elé helyezett félhullámlemezrel lehetett beállítani, hogy a szál két polarizációs módusa közül melyik gerjesztődjön. A referenciakarbéli félhullámlemez segítségével a referencia impulzus polarizációs síkját a tárgykarból érkezővel párhuzamosra állítottuk. A szálba való fény be- és kicsatolásához egy 30 mm és 19 mm fókusztávolságú NIR akromát lencsét használtunk. Diszperziójuk kompenzálása érdekében ugyanilyen lencsék kerültek a referenciakarba is. A spektrométer kimenetén előállt spektrális interferogram WFT módszeren alapuló kiértékelése során az interferogramot ablakoljuk az ablak-



1. ábra

A kísérleti elrendezés vázlata, valamint az interferogram feldolgozásának menete. Ti: S: Ti:zafír oszcillátor, MZI: Mach-Zehnder interferométer, P_1 és P_2 : polarizátorok, N_1 és N_2 : nyalábosztók, $\lambda/2$: félhullámlemez, L_1 és L_2 : lencsék.

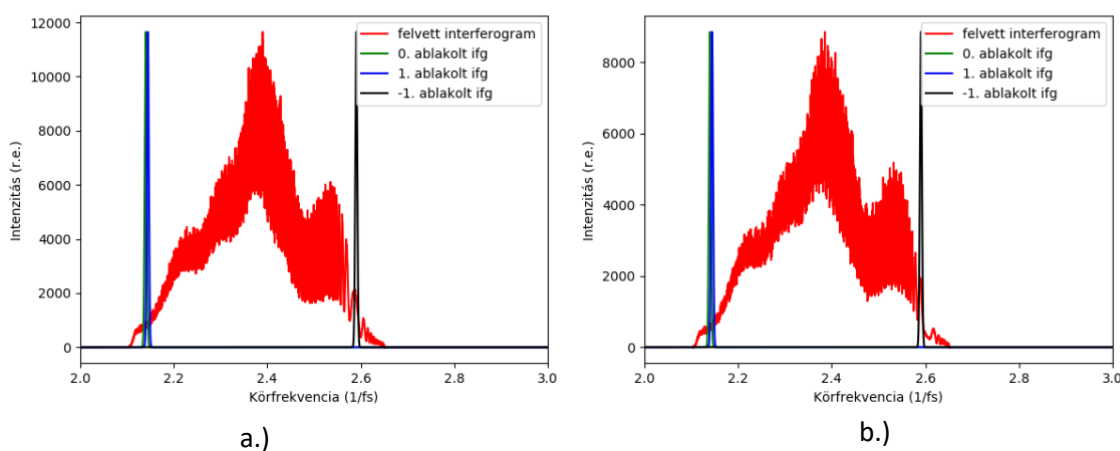
függvény központi körfrekvenciájának változtatásával, ami az ábrán látható végeredményhez hasonló WFT jelet ad.

4. Eredmények

A felvett interferogramok kiértékelését az általunk Python-nyelven írt, ablakolt Fourier-transzformációs gerincvonal keresésen alapuló programmal értékeltük ki. A diszperziós együtthatók minél pontosabb meghatározásában fontos feltétel, hogy a választott ablakfüggvény-szélességben a spektrális fázis lineáris függvénnyel közelíthető legyen, azaz a magasabb rendű diszperziós hatásoknak ne legyen szerepe a központi körfrekvenciák körüli kis tartományban. Mivel a GDD időbeli megnyúlást eredményez, így ideális esetben az összes Ω központi körfrekvenciánál vett ablakolt interferogram inverz Fourier-transzformációjával kapott időbeli jel szélessége a $\Delta\tau \Delta\Omega = \sqrt{8\ln(2)}$ kifejezésből becsülhető. Ezért a programban elhelyeztünk egy olyan részt, ami ennek a közelítésnek az érvényességét vizsgálja.

A kiértékelő programunk ellenőrzése érdekében a vizsgálandó szálhoz hasonló diszperziós együtthatók segítségével szimulált interferogramot értékeltünk ki először. Megfelelő $\Delta\Omega$ mellett a fenti kifejezésből adódó időértéket kapunk a WFT jel minden Ω körfrekvenciaértékénél, és ekkor a várt és kapott csoportképletet görbék jól illeszkedtek. A diszperziós együtthatók közötti különbség a TOD esetén is kisebb, mint 4% volt. Megjegyezzük, hogy nem megfelelő ablakszélesség választása esetén ez az eltérés akár 20%-nál is nagyobb lehet.

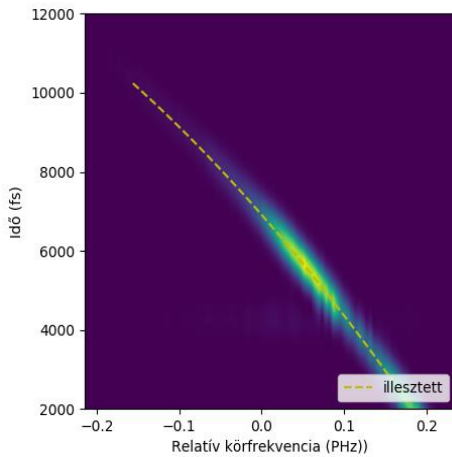
Ezt követően a vizsgálandó LMA szállal kapott interferogramok kiértékelését végeztük el. Mivel a szál a méréseink alapján kétféleképpen törő tulajdonságot mutatott a gyári adatlapjával ellentétben, így először a szál egyik tengelyének polarizációs síkjával párhuzamosra állítottuk a becsatolandó lézerpulzus polarizációs síkját a félhullámlemez segítségével, és ennek a nyalábnak a referenciakarban terjedő nyalábbal történő interferenciát vizsgáltuk. Ezt követően ugyanannál a késleltetőállásnál a szál másik tengelyére történő hasonló beállítással vettük fel az interferogramot. Egy ilyen felvett interferogramot mutat a 2. ábra az első két szomszédos és utolsó ablakfüggvénnyel. A két interferogram kiértékelésekor azonos ablakfüggvény szélességet és ablakolandó tartományt használtunk.



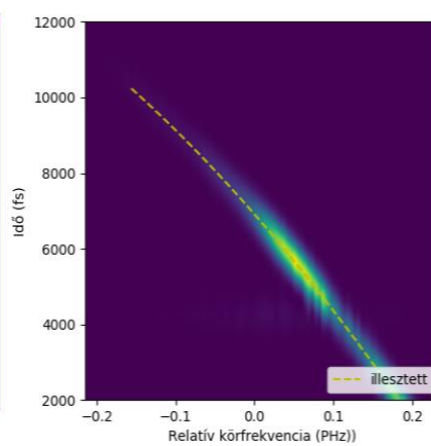
2. ábra

Azonos késleltetésnél felvett interferogram az első két szomszédos és az utolsó ablakfüggvénnyel a szál a) gyors, b) lassú tengelyére

Az ablakfüggvény Ω központi körfrekvenciáival ezen körfrekvencia-tartományon végig haladva, majd a kapott ablakolt interferogramok inverz Fourier-transzformációjával előállított WFT jelet polinommal megillesztve meghatároztuk a szál két tengelyére vonatkozó csoportképletelés görbéket, melyek a 3. ábrán láthatók. A kapott diszperziós együtthatókat az 1. táblázatban foglaltuk össze.



a.)



b.)

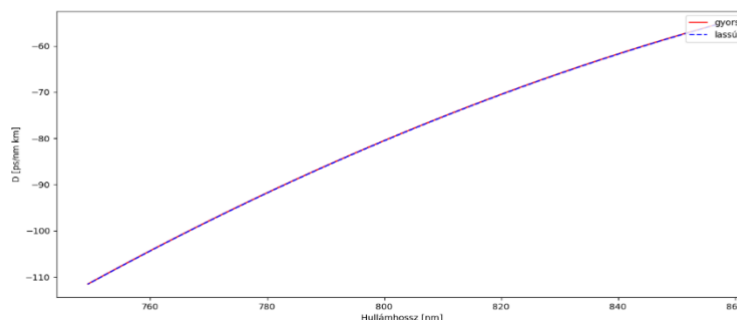
3. ábra

WFT jel a csoportképletelés görbével a) a szál gyors, b) a szál lassú tengelyére.

$\Delta\Omega = 0,003 \text{ PHz}$		
	Gyors	Lassú
GD [fs]	-6423	-6917
GDD [fs ²]	23814	23829
TOD [fs ³]	32630	32605

1. táblázat

Látható, hogy a két tengelyre adódó csoportképletelés görbe azonos lefutású, csupán eltérő csoportképletelésű, aminek eredményeképpen a két polarizációs tengely menti terjedésre vonatkozó *GDD* és *TOD* értékek páronként közel egybeesnek. Ebből következik, hogy a két tengelyhez tartozó *D* görbék (4. ábra) is gyakorlatilag egybeesnek.



4. ábra

A szál gyors és lassú tengelyére kapott *D* diszperziós görbék

5. Összefoglalás

Továbbfejlesztettük az ablakolt Fourier-transzformáció gerincvonalkereső algoritmusán alapuló kiértékelő programunkat, mely így alkalmas tömör magú, nagydiszperziójú optikai szálak mérésére is. A program a kiértékelés során folyamatosan visszajelzést ad, hogy a WFT eljárásban használt lineáris közelítés teljesül-e, és ennek megfelelően a mérést végző személy módosíthatja az ablakfüggvény szélességét.

A kiértékelő programunk alkalmazhatóságát egy kettősen törő LMA szál mindkét polarizációs tengelye mentén végzett diszperziómérés során demonstráltuk. Azt találtuk, hogy a két polarizációs irány menti terjedésnél a *GDD* és a *TOD* értékei hibahatáron belül egyeznek, azonban a két polarizációs módus esetén a csoportképletelés jelentős eltérést mutat. Megállapítottuk, hogy a szálak

diszperzióját jellemző D görbe a két polarizációs irányban szinte teljesen megegyezik, azaz a szálból kilépő impulzusalak mindkét polarizációs irányt tekintve azonos lesz.

Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. **EFOP-3.6.2-16-2017-00005** - „Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben”.

Az ELI-ALPS projekt (GINOP-2.3.6-15-2015-00001) az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásával valósul meg.

Irodalom

[1] P. St. J. Russel, Science **299**, 358 (2003).

<https://doi.org/10.1126/science.1079280>

[2] W. Göbel, A. Nimmerjahn, and F. Helmchen, Opt. Lett. **29**, 1285 (2004).

<https://doi.org/10.1364/OL.29.001285>

[3] T. Grósz, A. P. Kovács, M. Kiss, and R. Szipőcs, Appl. Opt. **53**, 1929 (2014).

<https://doi.org/10.1364/AO.53.001929>

[4] Q. Kema, Opt. Lasers Eng. **45**, 1186 (2007).

<https://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2006.11.005>

[5] T. Grósz, M. Horváth, and A. P. Kovács, Opt. Express **25**, 28459 (2017).

<https://doi.org/10.1364/OE.25.028459>

Névmutató

Ádám, Péter, 150
Ajtai, Tibor, 59
Aladi, Márk, 91
Almási, Gábor, 27, 81, 199
Ambrus, Rita, 59
Andrásik, Attila, 1, 7

Bakos, József S., 91
Bánhelyi, Balázs, 14
Barócsi, Attila, 132, 162
Benedict, Mihály G., 69, 143
Biró, László, 21
Bódog, Ferenc, 150
Bognár, Róbert, 181
Börzsönyi, Ádám, 52, 56
Budai, Judit, 1, 7, 34, 59
Buzády, Andrea, 27

Chikan, Viktor, 52, 56
Czirják, Attila, 69, 143
Csehi, András, 21, 174, 192
Csete, Mária, 14
Csontos, János, 34

Dajka, Rita, 181
Demeter, Gábor, 91
Djotyan, Gagik, 91
Dombi, Péter, 87

Erdei, Gábor, 162

Fekete, Balázs, 39
Fekete, Olivér, 14
Fésűs, Luca, 45, 188
Flender, Roland, 1, 7, 52, 56
Földes, István B., 118, 181
Földi, Péter, 64, 87, 137
Fülöp, József András, 199

Gábor, Bence, 64
Galambos, Máté, 162
Galbács, Gábor, 102
Gálos, Réka, 27
Gera, Tamás, 59
Geretovszky, Zsolt, 74, 102, 125

Gilicze, Barnabás, 118
Gombkötő, Ákos, 64
Groma, Géza I., 168
Grósz, Tímea, 204

Hack, Szabolcs, 69, 143
Halász, Gábor J., 192
Hebling, János, 27, 81, 199
Hettinger, Ernő, 188
Holló, Csaba, 162
Homik, Zsolt, 59
Hopp, Béla, 1, 7, 59, 102, 108
Horváth, Gábor, 74, 125
Horváth, Mercédesz, 204
Horváth, Viktória, 102
Horváth, Zoltán L., 112

Ignác, Péter, 91
Illés, Gergő, 81
Illés, Levente, 132

Kálmán, Orsolya, 157
Kasza, József, 87
Kedves, Miklós Á., 91
Keresztes, Zoltán, 64
Kéri, Albert, 102
Kis, Mariann, 97
Kiss, Mátyás, 39
Kiss, Tamás, 157
Kohut, Attila, 102
Kondász, Bence, 108
Kopniczky, Judit, 59, 102
Koppa, Pál, 162
Kovács, Attila Pál, 112, 204
Kovács, Bence M., 112
Kovács, László, 27
Kovács, Zsolt, 118
Körmöczy, Andor, 74, 125
Krizsán, Gergő, 199
Krolopp, Ádám, 188
Kukhlevsky, Szergej V., 39

Lenk, Sándor, 132

Magashegyi, István, 137

Majorosi, Szilárd, 69, 143
Makkai, Géza, 27
Maróti, Péter, 97
Martin, Ludovic, 45
Mechler, Mátyás, 150
Medvecz, Márta, 45
Mészáros, Anna, 81
Molnár, Gábor, 188

Nagy, Eszter, 59
Nagyillés, Bálint, 34
Nagypál, Rita, 168

Pálfalvi, László, 27, 81, 199
Pápa, Zsuzsanna, 34
Portik, Attila, 157

Ráczkevi, Béla, 91

Sági-Kazár, Máté, 132
Sarkadi, Balázs, 81
Sarkadi, Tamás, 162
Sarlós, Ferenc, 168
Shapolov, Anatolij A., 39
Sipos, Áron, 14, 168
Smart, James, 97
Smausz, Kolumbán Tamás, 59, 108
Solti, Ádám, 132

Solymosi, Katalin, 132
Sörlei, Zsuzsa, 91
Szabó-Révész, Piroska, 59
Szabó, Krisztián, 174
Szántó, Zoltán, 181
Szatmári, Sándor, 39, 118, 181
Szenes, András, 14
Szigeti, János, 91
Szipőcs, Robert, 45, 188
Szörényi, Tamás, 1, 7, 74, 125

Tamás, Gábor, 188
Tibai, Zoltán, 81, 199
Tóth, Attila, 192
Tóth, Emese, 14
Tóth, György, 27, 81, 199
Tóth, Zsolt, 34
Török, Péter, 188

Varró, Sándor, 64, 69
Vass, Dávid, 14
Vass, Lajos, 188
Vibók, Ágnes, 192
Vukovity, Krisztina, 204

Wikonkál, Norbert, 45, 188

Xiaojun, Wu, 27